

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日                      2 0 0 3 年   1 月 2 4 日  
Date of Application:

出 願 番 号                      特 願 2 0 0 3 - 0 1 6 6 2 2  
Application Number:

[ST. 10/C]:                      [ J P 2 0 0 3 - 0 1 6 6 2 2 ]

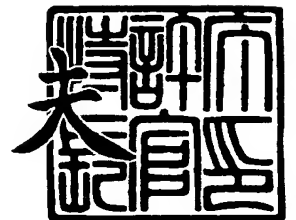
出 願 人                      株式会社デンソー  
Applicant(s):



2 0 0 3 年 1 1 月 1 3 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康



出証番号   出証特 2 0 0 3 - 3 0 9 3 8 2 6

【書類名】 特許願

【整理番号】 N-80010

【提出日】 平成15年 1月24日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 B28B 3/00

【発明の名称】 再生セラミック化原料及びこれを利用したコージェライ  
トセラミック体の製造方法

【請求項の数】 17

【発明者】

    【住所又は居所】 愛知県刈谷市昭和町 1 丁目 1 番地 株式会社デンソー内

    【氏名】 牧野 健太郎

【特許出願人】

    【識別番号】 000004260

    【氏名又は名称】 株式会社デンソー

【代理人】

    【識別番号】 100079142

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 高橋 祥泰

【選任した代理人】

    【識別番号】 100110700

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 岩倉 民芳

【手数料の表示】

    【予納台帳番号】 009276

    【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

    【物件名】 明細書 1

    【物件名】 図面 1

    【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0105519

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 再生セラミック化原料及びこれを利用したコージェライトセラミック体の製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 セラミック化原料及びバインダを混合して混合原料を生成する混合工程と、上記混合原料に混合液を加えて加湿原料を生成する加湿工程と、上記加湿原料を混練すると共に、押出成形によりセラミック成形体を成形する成形工程と、上記セラミック成形体を乾燥する乾燥工程と、乾燥された上記セラミック成形体の不要部を切断して、上記セラミック成形体を所定長さに切断加工する切断工程と、所定長さの上記セラミック成形体を焼成してセラミック焼成体を生成する焼成工程とを含むコージェライトセラミック体の製造方法において、

上記切断工程において生じた上記不要部を粉砕する粉砕処理を行った後、少なくとも所定の大きさに満たない粒子を除去する分級処理を行って、所定の大きさの範囲に属する粒子からなる粉砕粒子を生成する再生工程を実施し、

上記混合工程における上記セラミック化原料の少なくとも一部としては、上記粉砕粒子を用いることを特徴とするコージェライトセラミック体の製造方法。

【請求項 2】 請求項 1 において、上記混合工程の上記セラミック化原料のうちバージン原料 100 重量部に対して、上記粉砕粒子の含有率は 1 重量部以上 30 重量部以下であることを特徴とするコージェライトセラミック体の製造方法。

【請求項 3】 請求項 1 又は 2 において、上記コージェライトセラミック体は、ハニカム構造を有するハニカム構造体であることを特徴とするコージェライトセラミック体の製造方法。

【請求項 4】 セラミック化原料及びバインダを混合して混合原料を生成する混合工程と、上記混合原料に混合液を加えて加湿原料を生成する加湿工程と、上記加湿原料を混練すると共に、押出成形によりセラミック成形体を成形する成形工程と、上記セラミック成形体を乾燥する乾燥工程と、乾燥された上記セラミック成形体の不要部を切断して、上記セラミック成形体を所定長さに切断加工する切断工程と、所定長さの上記セラミック成形体を焼成してセラミック焼成体を

生成する焼成工程とを含むコージェライトセラミック体の製造方法において、

上記切断工程において生じた上記不要部を焼成することにより、該不要部に内在していた上記バインダを消失させて粉体化し、パウダー状の再生パウダーを生成する粉体化工程を実施し、

上記混合工程における上記セラミック化原料の少なくとも一部としては、上記再生パウダーを用いることを特徴とするコージェライトセラミック体の製造方法。

【請求項 5】 請求項 4 において、上記粉体化工程では、温度 6 0 0℃以上 1 0 0 0℃以下の雰囲気中で、上記不要部を焼成することを特徴とするコージェライトセラミック体の製造方法。

【請求項 6】 請求項 4 又は 5 において、上記セラミック化原料中の上記再生パウダーの含有率に応じて、上記混合工程における上記バインダ又は上記加湿工程における上記混合液の投入量を変更することを特徴とするコージェライトセラミック体の製造方法。

【請求項 7】 請求項 4 ～ 6 のいずれか 1 項において、上記混合工程の上記セラミック化原料のうちバージン原料 1 0 0 重量部に対して、上記再生パウダーの含有率は 1 重量部以上 3 0 重量部以下であることを特徴とするコージェライトセラミック体の製造方法。

【請求項 8】 請求項 4 ～ 7 のいずれか 1 項において、上記コージェライトセラミック体は、ハニカム構造を有するハニカム構造体であることを特徴とするコージェライトセラミック体の製造方法。

【請求項 9】 セラミック化原料及びバインダを混合して混合原料を生成する混合工程と、上記混合原料に混合液を加えて加湿原料を生成する加湿工程と、上記加湿原料を混練すると共に、押出成形によりセラミック成形体を成形する成形工程と、上記セラミック成形体を乾燥する乾燥工程と、乾燥された上記セラミック成形体の不要部を切断して、上記セラミック成形体を所定長さに切断加工する切断工程と、所定長さの上記セラミック成形体を焼成してセラミック焼成体を生成する焼成工程とを含むコージェライトセラミック体の製造方法において、

上記加湿工程及び上記成形工程は、上記混合原料を混練すると共に成型型に向

かって押し出すよう構成した成形機によって並行して実施し、

上記切断工程において生じた上記不要部を上記成形機に投入すると共に、上記混合液を上記成形機に投入することを特徴とするコージェライトセラミック体の製造方法。

【請求項 10】 請求項 9 において、上記成形機に投入する上記不要部の投入量に応じて、上記成形機内の上記加湿材料を冷却するための冷却能力を制御することを特徴とするコージェライトセラミック体の製造方法。

【請求項 11】 請求項 9 又は 10 において、上記コージェライトセラミック体は、ハニカム構造を有するハニカム構造体であることを特徴とするコージェライトセラミック体の製造方法。

【請求項 12】 セラミック化原料及びバインダを混合して混合原料を生成する混合工程と、上記混合原料に混合液を加えて加湿原料を生成する加湿工程と、上記加湿原料を混練すると共に、押出成形によりセラミック成形体を成形する成形工程と、上記セラミック成形体を乾燥する乾燥工程と、上記セラミック成形体の不要部を切断して、上記セラミック成形体を所定長さに切断加工する切断工程と、所定長さの上記セラミック成形体を焼成してセラミック焼成体を生成する焼成工程とを含むコージェライトセラミック体の製造工程において生じた上記不要部又は、上記乾燥工程において生じた不良品としての不良乾燥品から再生した再生セラミック化原料であって、

該再生セラミック化原料は、上記不要部又は上記不良乾燥品の少なくともいずれか一方を粉砕すると共に、少なくとも、所定の大きさに満たない粒子を除去することにより得られた所定の大きさの範囲に属する粒子からなる粉砕粒子であることを特徴とする再生セラミック化原料。

【請求項 13】 請求項 12 において、上記粉砕粒子の長手方向に略直交する断面の最大寸法は、1 mm 以上 5 mm 以下であることを特徴とする再生セラミック化原料。

【請求項 14】 請求項 12 又は 13 において、上記コージェライトセラミック体は、ハニカム構造を有するハニカム構造体であることを特徴とする再生セラミック化原料。

【請求項 15】 セラミック化原料及びバインダを混合して混合原料を生成する混合工程と、上記混合原料に混合液を加えて加湿原料を生成する加湿工程と、上記加湿原料を混練すると共に、押出成形によりセラミック成形体を成形する成形工程と、上記セラミック成形体を乾燥する乾燥工程と、乾燥された上記セラミック成形体の不要部を切断して、上記セラミック成形体を所定長さに切断加工する切断工程と、所定長さの上記セラミック成形体を焼成してセラミック焼成体を生成する焼成工程とを含むコーージェライトセラミック体の製造工程において生じた上記不要部又は、上記乾燥工程において生じた不良品としての不良乾燥品から再生した再生セラミック化原料であって、

該再生セラミック化原料は、上記不要部又は上記不良乾燥品の少なくともいずれか一方を焼成することにより、内在していた上記バインダを消失させて粉体化して生成したパウダー状の再生パウダーであることを特徴とする再生セラミック化原料。

【請求項 16】 請求項 15 において、上記再生パウダーは、温度 600℃ 以上 1000℃ 以下の雰囲気中で焼成して得たものであることを特徴とする再生セラミック化原料。

【請求項 17】 請求項 15 又は 16 において、上記コーージェライトセラミック体は、ハニカム構造を有するハニカム構造体であることを特徴とする再生セラミック化原料。

#### 【発明の詳細な説明】

##### 【0001】

##### 【技術分野】

本発明は、コーージェライトセラミック体の製造工程において生じた端材から生成した再生セラミック化原料、及び、再生セラミック化原料を利用したコーージェライトセラミック体の製造方法に関する。

##### 【0002】

##### 【従来技術】

コーージェライトセラミックは、優れた耐熱性を有すると共に、広い温度範囲において熱膨張係数が低く安定しているという優れた熱特性を有している。このよ

うな熱特性を活かし、内燃機関の排気ガス中のHC、CO、NO<sub>x</sub>等の有害物質を除去する触媒担体としてのハニカム構造のコージェライトセラミック体が開発されている。

#### 【0003】

このコージェライトセラミック体を製造するに当たっては、バージン原料粉にバインダを導入してスラリー化し、該スラリーを成形、乾燥して乾燥成形体を得る。そして、この乾燥成形体を焼成することでコージェライトセラミック体を作製する方法が従来よく知られている。

#### 【0004】

一方、コージェライトセラミック体の製造方法において、原料コストの削減や資源保護の観点から、成形プロセス中に発生する端材や不良品等の有効活用が求められている。

そこで、上記製造工程における焼成前の乾燥材料から再生された再生セラミック化原料を利用したコージェライトセラミック体の製造方法が提案されている（例えば、特許文献1参照。）。

#### 【0005】

##### 【特許文献1】

特公平3-72032号公報（第8-11頁、第6表）

#### 【0006】

##### 【解決しようとする課題】

しかしながら、従来の再生セラミック化原料を利用したコージェライトセラミック体の製造方法においては、次のような問題がある。すなわち、再生セラミック化原料を利用して作製したコージェライトセラミック体では、特許文献1の明細書中、第6表に示されるごとく、熱膨張係数が劣化（大きくなる）する等、その品質が劣化する場合がある。

#### 【0007】

本発明は、かかる従来の問題点に鑑みてなされたもので、コージェライトセラミック体の品質の劣化を生じない再生セラミック化原料及び再生セラミック化原料を用いたコージェライトセラミック体の製造方法を提供しようとするものであ



る。

#### 【0008】

##### 【課題の解決手段】

第1の発明は、セラミック化原料及びバインダを混合して混合原料を生成する混合工程と、上記混合原料に混合液を加えて加湿原料を生成する加湿工程と、上記加湿原料を混練すると共に、押出成形によりセラミック成形体を成形する成形工程と、上記セラミック成形体を乾燥する乾燥工程と、乾燥された上記セラミック成形体の不要部を切断して、上記セラミック成形体を所定長さに切断加工する切断工程と、所定長さの上記セラミック成形体を焼成してセラミック焼成体を生成する焼成工程とを含むコージュライトセラミック体の製造方法において、

上記切断工程において生じた上記不要部を粉砕する粉砕処理を行った後、少なくとも所定の大きさに満たない粒子を除去する分級処理を行って、所定の大きさの範囲に属する粒子からなる粉砕粒子を生成する再生工程を実施し、

上記混合工程における上記セラミック化原料の少なくとも一部としては、上記粉砕粒子を用いることを特徴とするコージュライトセラミック体の製造方法にある（請求項1）。

#### 【0009】

上記第1の発明の製造方法では、上記再生工程の上記分級処理において、上記不要部を粉砕した粒子のうち、所定の大きさに満たない粒子を除去して、上記粉砕粒子を生成することを特徴としている。

そして、粉砕粒子の大きさを上記の範囲に維持することにより、作製するコージュライトセラミック体の品質に与える影響を抑制することができる。

すなわち、発明者らは、粉砕粒子の粒径を細かくし過ぎると、コージュライトセラミック体の品質が低下するという有意な相関関係を実験的に求め、この関係に着目したのである。

#### 【0010】

また、上記第1の発明の製造方法は、上記混合工程において、上記再生工程で生成した上記粉砕粒子と、バージン原料とからなる上記セラミック化原料と、上記バインダとを混合して上記混合原料を生成することを特徴としている。

すなわち、上記第1の発明の製造方法によれば、バージン原料のみを取り扱う既存の製造装置をそのまま流用することができ効率的である。

#### 【0011】

第2の発明は、セラミック化原料及びバインダを混合して混合原料を生成する混合工程と、上記混合原料に混合液を加えて加湿原料を生成する加湿工程と、上記加湿原料を混練すると共に、押出成形によりセラミック成形体を成形する成形工程と、上記セラミック成形体を乾燥する乾燥工程と、乾燥された上記セラミック成形体の不要部を切断して、上記セラミック成形体を所定長さに切断加工する切断工程と、所定長さの上記セラミック成形体を焼成してセラミック焼成体を生成する焼成工程とを含むコージェライトセラミック体の製造方法において、

上記切断工程において生じた上記不要部を焼成することにより、該不要部に内在していた上記バインダを消失させて粉体化し、パウダー状の再生パウダーを生成する粉体化工程を実施し、

上記混合工程における上記セラミック化原料の少なくとも一部としては、上記再生パウダーを用いることを特徴とするコージェライトセラミック体の製造方法にある（請求項4）。

#### 【0012】

上記第2の発明の製造方法では、上記粉体化工程において、回収した上記不要部を焼成して粉体化し、パウダー状の上記再生パウダーとすることを特徴としている。

すなわち、上記粉体化工程によれば、上記不要部が含有する上記バインダを消失することで粉末状の上記再生パウダーを生成することができる。粉碎等することなく生成した上記再生パウダーでは、上記セラミック化原料の品質が変質するおそれが少ない。また、バインダを除去することにより、バージン原料に近い品質を実現することができる。

そのため、この再生パウダーを用いて製造したコージェライトセラミック体と、新品原料のみから製造したコージェライトセラミック体との間で、熱膨張係数等、品質の相違を生じるおそれが少ない。

#### 【0013】

さらに、上記第2の発明の製造方法は、上記再生パウダーと、バージン原料とを混合して、上記混合工程における上記セラミック化原料として利用することを特徴としている。

すなわち、この製造方法によれば、バージン原料のみを取り扱う既存の製造装置を流用でき効率的である。

#### 【0014】

第3の発明は、セラミック化原料及びバインダを混合して混合原料を生成する混合工程と、上記混合原料に混合液を加えて加湿原料を生成する加湿工程と、上記加湿原料を混練すると共に、押出成形によりセラミック成形体を成形する成形工程と、上記セラミック成形体を乾燥する乾燥工程と、乾燥された上記セラミック成形体の不要部を切断して、上記セラミック成形体を所定長さに切断加工する切断工程と、所定長さの上記セラミック成形体を焼成してセラミック焼成体を生成する焼成工程とを含むコーゼライトセラミック体の製造方法において、

上記加湿工程及び上記成形工程は、上記混合原料を混練すると共に成型型に向かって押し出すよう構成した成形機によって並行して実施し、

上記切断工程において生じた上記不要部を上記成形機に投入すると共に、上記混合液を上記成形機に投入することを特徴とするコーゼライトセラミック体の製造方法にある（請求項9）。

#### 【0015】

上記第3の発明の製造方法は、上記不要部を、直接、上記成形機に投入して再混練することを特徴としている。

すなわち、この方法は、上記不要部に対して何らの処理も施すことなく、上記成形機により直接的に再混練する。再混練によれば、不要部に含まれていたセラミック化原料及びバインダを劣化させるおそれが少ない。

#### 【0016】

そのため、上記第3の発明によれば、作製したコーゼライトセラミック体の熱膨張係数が劣化するおそれが少ない。さらに、この方法によれば、上記不要部に含まれていたセラミック化原料のみでなく、上記バインダも再利用することができる。

ただし、この製造方法では、乾燥硬化した上記不要部の混練が必須となるため、上記成形機の混練トルクの強化や、混練時の発熱に対処する例えば冷却装置の強化等、装置側の改造が必要となる場合がある。

#### 【0017】

第4の発明は、セラミック化原料及びバインダを混合して混合原料を生成する混合工程と、上記混合原料に混合液を加えて加湿原料を生成する加湿工程と、上記加湿原料を混練すると共に、押出成形によりセラミック成形体を成形する成形工程と、上記セラミック成形体を乾燥する乾燥工程と、上記セラミック成形体の不要部を切断して、上記セラミック成形体を所定長さに切断加工する切断工程と、所定長さの上記セラミック成形体を焼成してセラミック焼成体を生成する焼成工程とを含むコージュライトセラミック体の製造工程において生じた上記不要部又は、上記乾燥工程において生じた不良品としての不良乾燥品から再生した再生セラミック化原料であって、

該再生セラミック化原料は、上記不要部又は上記不良乾燥品の少なくともいずれか一方を粉砕すると共に、少なくとも、所定の大きさに満たない粒子を除去することにより得られた所定の大きさの範囲に属する粒子からなる粉砕粒子であることを特徴とする再生セラミック化原料にある（請求項12）。

#### 【0018】

上記第4の発明の再生セラミック化原料は、上記切断工程において生じた上記不要部又は、上記乾燥工程において生じた上記不良乾燥品を粉砕して得た粒子から、少なくとも、所定の大きさに満たない粒子を除去して精製した上記粉砕粒子である。

そして、この再生セラミック化原料は、既存のバージン原料を利用する製造工程への適用が容易であり、熱膨張係数の優れたコージュライトセラミック体を製造し得る材料である。

#### 【0019】

第5の発明は、セラミック化原料及びバインダを混合して混合原料を生成する混合工程と、上記混合原料に混合液を加えて加湿原料を生成する加湿工程と、上記加湿原料を混練すると共に、押出成形によりセラミック成形体を成形する成形

工程と、上記セラミック成形体を乾燥する乾燥工程と、乾燥された上記セラミック成形体の不要部を切断して、上記セラミック成形体を所定長さに切断加工する切断工程と、所定長さの上記セラミック成形体を焼成してセラミック焼成体を生成する焼成工程とを含むコーゼライトセラミック体の製造工程において生じた上記不要部又は、上記乾燥工程において生じた不良品としての不良乾燥品から再生した再生セラミック化原料であって、

該再生セラミック化原料は、上記不要部又は上記不良乾燥品の少なくもといずれか一方を焼成することにより、内在していた上記バインダを消失させて粉体化して生成したパウダー状の再生パウダーであることを特徴とする再生セラミック化原料にある（請求項15）。

#### 【0020】

上記第5の発明の再生セラミック化原料は、回収した上記不要部を焼成して粉体化しパウダー状の再生パウダーとしたものである。すなわち、粉碎等することなく再生された上記再生パウダーでは、上記セラミック化原料の品質が変質するおそれが少ない。また、バインダを消失させることにより、バージン原料に近い再生セラミック化原料を生成することができる。

そのため、この再生パウダーを用いて製造したコーゼライトセラミック体と、新品原料のみから製造したコーゼライトセラミック体との間で、熱膨張係数等の品質の相違を生じるおそれが少ない。

#### 【0021】

##### 【発明の実施の形態】

上記第1の発明において、上記粉碎粒子の大きさとしては、例えば、上記粉碎粒子の長手方向に略直交する断面形状における最大寸法を定義することができる。以下、上記粉碎粒子の大きさを、適宜、粉碎粒子の粒径として記載する。

そして、上記粉碎粒子の粒径は、1mm以上5mm以下とすることが好ましい。上記粉碎粒子の粒径を1mm以上とすることで、作製した上記コーゼライトセラミック体の熱膨張係数等、品質の劣化を抑制することができる。また、粒径を5mm以下とすることで、上記成形工程における様々なトラブルを抑制できると共に、例えば、粉状体の搬送方法として一般的なエア搬送を、効率良く利用す

ることができる。

#### 【0022】

詳しくは、後述する実施例2で説明するが、発明者らは、鋭意実施した様々な実験を通じて、コーゼライトセラミック体の熱膨張係数が劣化する臨界点が粉碎粒子の粒径1mmの点にあり、粒径1mm未満の粉碎粒子から作製されたセラミックコーゼライト体は、品質が劣ることを見出した。

#### 【0023】

そして、粒径が5mmを超える粉碎粒子は、凝集によりさらに巨大な2次粒子を形成するおそれがあり、上記成形工程における、例えば成型型の目詰まり等の不具合を誘発するおそれがある。

さらに、粒径が5mmを超えると上記粉碎粒子間の隙間が大きくなり、例えば、エア搬送においてエア抜けを生じ、搬送効率が低下するおそれがある。

#### 【0024】

なお、上記分級処理として、上記の所定の大きさに満たない粒子を除去する処理に、所定の大きさを超える粒子を除去する処理を組み合わせることもできる。この場合には、所定の大きさに満たない粒子のみならず、所定の大きさを超える粒子を除去して、上記粉碎粒子の大きさを所定の範囲内に、確実に収めることができる。

#### 【0025】

また、この分級処理としては、例えば、濾過網等を有する濾過器により実施することができる。所定の粒径に満たない粒子を除去するには、粒子のうち、上記濾過網を通過した粒子を除去、分離すれば良い。一方、所定の粒子を超える粒子を除去するには、上記濾過網を通過せず濾過器に残留した粒子を除去、分離すれば良い。

また、上記分級処理は、上記のごとく、濾過器を用いてする方法のほか、気流分級等によって実施することもできる。

#### 【0026】

ここで、いずれの分級処理によっても、完璧に粒径を分別することは困難である。即ち、上記第1の発明における上記分級処理は、所定の粒径を分級するとい

う作用効果を狙って物理的に構成された装置を用いて実施する処理である。

そのため、選別された粒子群中に、たまたま、所定の粒径に満たない粒子が、若干量含まれることがある。

したがって、上記第1の発明における上記粉碎粒子とは、全ての粒子が所望の粒径を有する場合に限られず、上記分級処理の特性上、分級処理後にも所望の粒径を外れる粒子が若干含有される場合も含む概念であることは言うまでもない。

#### 【0027】

さらに、上記加湿工程に適用する上記混合液は、上記成形工程における材料の潤滑性等を向上するための添加剤である。そして、この混合液としては、サラダ油などの油性油、水溶性油等を混合したものを用いることができる。

#### 【0028】

また、上記混合工程の上記セラミック化原料のうちバージン原料100重量部に対して、上記粉碎粒子の含有率は1重量部以上30重量部以下であることが好ましい（請求項2）。

ここで、乾燥した上記セラミック成形体を粉碎した上記粉碎粒子は、「さらさら」した状態にある。しかし、上記粉碎粒子中の一次粒子は、一旦溶けて膜状となったバインダにより被われている。

そのため、上記加湿工程において水、油等からなる上記混合液等と、上記粉碎粒子とが触れ合うと、上記の膜状のバインダが粘着性を発揮し、上記粉碎粒子自体が「べとべと」した状態になる。そうすると、この粉碎粒子どうしが、相互に接着されて巨大な2次粒子を生成するおそれがある。

#### 【0029】

バージン原料100重量部に対して、上記粉碎粒子の含有率が1重量部以上30重量部以下であって、粉碎粒子に対してバージン原料粉末が大量に存在する場合には、上記のごとく、「べとべと」した粉碎粒子の表面を、バージン原料粉末で被うことができる。そして、それぞれの粉碎粒子を、あたかも「きな粉をまぶした餅」のような「さらさら」した状態にできる。

#### 【0030】

したがって、この場合には、加湿工程における粉碎粒子の凝集を抑制すること

ができる。そして、粉碎粒子の凝集を抑制すれば、巨大な2次粒子が形成されて生じるおそれのある、例えば、成形性の悪化や、成形型の目詰まり、成形機の詰まりなど種々の問題を未然防止することができる。

#### 【0031】

また、上記コーージェライトセラミック体は、ハニカム構造を有するハニカム構造体であることが好ましい（請求項3）。

この場合には、上記コーージェライトセラミック体は、熱による歪みや割れ等を生じやすく、熱膨張係数を良好に維持できるという上記第1の発明による作用効果が特に有効となる。

#### 【0032】

上記第2の発明のコーージェライトセラミック体の製造方法においては、上記粉体化工程では、温度600℃以上1000℃以下の雰囲気中で、上記不要部を焼成することが好ましい（請求項5）。

この場合には、上記不要部に含まれる上記バインダを適切に消失させることができる。

#### 【0033】

温度が600℃未満である場合には、上記不要部に含まれる上記バインダを完全に除去できないおそれがある。

一方、温度が1000℃を超えると、上記不要部を組成するセラミック材料が焼結してしまうおそれがある。

なお、より好ましくは、温度600℃以上700℃以下の雰囲気中で、上記不要部を焼成するのが良い。

この場合には、上記再生パウダー中の結晶水の蒸散を抑制することができる。

#### 【0034】

また、上記セラミック化原料中の上記再生パウダーの含有率に応じて、上記混合工程における上記バインダ又は上記加湿工程における上記混合液の投入量を変更することが好ましい（請求項6）。

ここで、上記再生パウダーでは、焼成により内部の結晶水が蒸散し、不足しているおそれがある。そして、再生パウダーを含む上記セラミック化原料からなる



上記加湿原料では、上記成形工程における潤滑性が不足するおそれがある。

【 0 0 3 5 】

そこで、上記セラミック化原料中の上記再生パウダーの含有率に応じて、上記バインダ又は上記混合液の投入量を変更する場合には、上記バインダ又は上記混合液によって、上記成形工程における上記加湿原料の潤滑性を補うことができる。

すなわち、上記セラミック化原料中の上記再生パウダーの含有率が高いほど、上記混合液の投入量を増量するのが好ましい。

【 0 0 3 6 】

また、上記混合工程の上記セラミック化原料のうちバージン原料 1 0 0 重量部に対して、上記再生パウダーの含有率は 1 重量部以上 3 0 重量部以下であることが好ましい（請求項 7）。

この場合には、上記第 2 の発明の製造方法により製造したコージェライトセラミック体と、バージン原料のみを用いて製造したコージェライトセラミック体との品質の違いをさらに抑制することができる。

また、上記含有率の範囲であれば、コージェライトセラミック体の製造工程における一般的な材料歩留まり率とも良好に整合するため、上記第 2 の発明の製造方法による製造工程を安定的、かつ、効率良く継続し得る。

【 0 0 3 7 】

また、上記コージェライトセラミック体は、ハニカム構造を有するハニカム構造体であることが好ましい（請求項 8）。

この場合には、上記コージェライトセラミック体は、熱歪みによる割れ等を生じやすく、熱膨張係数を良好に維持するという上記第 1 の発明による作用効果が特に有効となる。

【 0 0 3 8 】

上記第 3 の発明コージェライトセラミック体の製造方法においては、上記成形機に投入する上記不要部の投入量に応じて、上記成形機内の上記加湿材料を冷却するための冷却能力を制御することが好ましい（請求項 1 0）。

【 0 0 3 9 】

この場合には、強力な混練トルクを必要とし、混練時の発熱量も大きい上記不要部を、適切に混練することができる。そして、混練時の温度上昇を抑止することにより、上記加湿材料の変質を未然に防止できる。

すなわち、上記成形機内の上記加湿材料の温度を略一定に保持するためには、上記不要部の投入量が多いほど、上記成形機内の上記加湿材料を冷却する冷却能力を大きくするのが良い。

#### 【0040】

また、上記コーージェライトセラミック体は、ハニカム構造を有するハニカム構造体であることが好ましい（請求項11）。

この場合には、熱による歪みや割れ等を生じやすく、熱膨張係数を良好に維持するという上記第3の発明による作用効果が特に有効となる。

#### 【0041】

上記第4の発明においては、上記粉碎粒子の大きさとしては、例えば、上記粉碎粒子の長手方向に略直交する断面形状における最大寸法を定義することができる。

#### 【0042】

また、上記粉碎粒子の長手方向に略直交する断面の最大寸法は、1mm以上5mm以下であることが好ましい（請求項13）。

この場合には、上記第1の発明において説明したごとく、作製したセラミックコーージェライト体について、熱膨張係数の劣化等、品質の劣化が生じるおそれが少ない。

なお、上記の最大寸法は、適宜、上記粉碎粒子の粒径と表現する。

#### 【0043】

上記粉碎粒子の凝集によりさらに巨大な2次粒子を形成するおそれが少なく、上記成形工程における、例えば成型型の目詰まり等の不具合を誘発するおそれが少ない。

さらに、上記粉碎粒子の粒径を5mm以下とすることにより、例えば、粒子状を呈する材料の搬送方法として一般的なエア搬送を、効率良く利用することができる。

## 【0044】

上記粉碎粒子に粒径1mm未満の粒子を含めると、作製した上記コーゼライトセラミック体の熱膨張係数等が劣化するおそれがある。

一方、上記粉碎粒子に粒径5mmを超える粒子を含めると、粉碎粒子の凝集による巨大な2次粒子が上記成形工程で悪影響を及ぼすおそれがある。

さらに、粉碎粒子間の隙間が大きくなり、例えば、搬送管にエアを圧送して搬送管内の材料を搬送するエア搬送において、エア抜けを生じて搬送効率が低下するおそれがある。

## 【0045】

また、上記コーゼライトセラミック体は、ハニカム構造を有するハニカム構造体であることが好ましい（請求項14）。

この場合には、熱による歪みや割れ等を生じやすいハニカム構造のコーゼライトセラミック体の原料として、熱膨張係数を良好に維持できるという上記第4の発明による作用効果が特に有効となる。

## 【0046】

上記第5の発明の再生セラミック化原料においては、上記再生パウダーは、温度600℃以上1000℃以下の雰囲気中で焼成して得たものであることが好ましい（請求項16）。

この場合には、上記不要部に含まれる上記バインダを適切に除去することができる。

温度が600℃未満である場合には、上記不要部に含まれる上記バインダを完全に除去できないおそれがある。

一方、温度が1000℃を超えると、上記不要部を組成するセラミック材料が焼結してしまうおそれがある。

## 【0047】

また、上記コーゼライトセラミック体は、ハニカム構造を有するハニカム構造体であることが好ましい（請求項17）。

この場合には、熱による歪みや割れ等を生じやすいハニカム構造のコーゼライトセラミック体の原料として、熱膨張係数を良好に維持できるという上記第5

の発明による作用効果が特に有効となる。

#### 【0048】

##### 【実施例】

##### （実施例 1）

本例のコーゼライトセラミック体 8（図 2）の製造方法について、図 1～図 6 を用いて説明する。

本例のコーゼライトセラミック体 8 の製造方法は、図 1 に示すごとく、セラミック化原料 7 1 及びバインダ 1 2 1 を混合して混合原料 7 2 を生成する混合工程 S 1 2 0 と、上記混合原料 7 2 に混合液 1 3 1 を加えて加湿原料 7 3 を生成する加湿工程 S 1 3 0 と、上記加湿原料 7 3 を混練すると共に、押出成形によりセラミック成形体 8 8 を成形する成形工程 S 1 4 0（図 4）と、セラミック成形体 8 8 を乾燥する乾燥工程 S 1 5 0 と、セラミック成形体 8 8 の不要部 8 8 8 を切断して、上記セラミック成形体 8 8 を所定長さに切断加工する切断工程 S 1 6 0（図 5）と、セラミック成形体 8 8 を焼成してセラミック焼成体 8 8 0 を生成する焼成工程 S 1 7 0 とを含む。

#### 【0049】

さらに、上記切断工程 S 1 6 0 において生じた不要部 8 8 8 を粉砕する粉砕処理 S 1 8 1 を行った後、少なくとも所定の大きさに満たない粒子を除去する分級処理 S 1 8 2 を行い、所定の大きさの範囲に属する粒子からなる粉砕粒子 7 4 を生成する再生工程 S 1 8 0 を実施する。

そして、上記混合工程 S 1 2 0 の上記セラミック化原料 7 1 の少なくとも一部としては、上記粉砕粒子 7 4 を用いる。

以下、この内容について詳しく説明する。

#### 【0050】

本例では、上記のごとく、混合工程 S 1 2 0 と加湿工程 S 1 3 0 と成形工程 S 1 4 0 と乾燥工程 S 1 5 0 と切断工程 S 1 6 0 と焼成工程 S 1 7 0 とを組み合わせた製造工程により、再生セラミック化原料としての上記粉砕粒子 7 4 を含むセラミック化原料 7 1 を利用して、コーゼライトセラミック体 8 を製造する。

#### 【0051】

特に、本例の上記再生工程 S 1 8 0 の粉碎処理 S 1 8 1 では、粒子の長手方向に略直交する断面の最大寸法（以下、適宜粒径と記載する。）が 5 mm 以下となるよう上記不要部 8 8 8 を粉碎する。そして、上記分級処理 S 1 8 2 では、少なくとも、粒径 1 mm 未満の粒子を除去する点に特徴を有する。

そして、粉碎処理 S 1 8 1 と分級処理 S 1 8 2 との組み合わせにより、粒径 1 mm ～ 5 mm の粒子からなる粉碎粒子 7 4 を生成する。

#### 【0052】

本例で作製するコーゼライトセラミック体 8 は、図 2 に示すごとく、外皮 8 1 と、該外皮 8 1 内に格子状に配設された隔壁 8 2 と、該隔壁 8 2 に区画されて軸方向に貫通した多数のセル 8 0 とを有する。

そして、本例で使用した新品のセラミックス化原料 7 0 は、焼成後にコーゼライトとなりうる成分であるタルク、カオリン及びアルミナの各粉末からなる。

#### 【0053】

本例では、まず、図 3 に示すごとく、混合工程 S 1 2 0 の前工程である原料処理工程 S 1 1 0（図 1）により、100 重量部のバージン原料 7 0 を、38 重量部のタルク、42 重量部のカオリン及び、20 重量部のアルミナの各原料粉末から生成する。

#### 【0054】

この原料処理工程 S 1 1 0 では、まず、図 3 に示すごとく、上記の各原料粉末を保持する各ディスペンサ 1 1 1 ～ 1 1 5 から、それぞれ適正量の粉末を計量して原料粉末を得る。そして、攪拌槽 1 1 7 に投入した上記原料粉末と給水管 1 1 9 より供給した水とを、攪拌羽 1 1 8 により攪拌してスラリー状のバージン原料 7 0 を生成する。

#### 【0055】

次に、混合工程 S 1 2 0 では、上記不要部 8 8 8 を処理した再生化セラミック原料である粉末粒子 7 4 及びバージン原料 7 0 とからなるセラミック化原料 7 1 と、粉末状のバインダ 1 2 1 とを混合する。この混合工程は、ミキシング装置を用いて実施した。

#### 【0056】

この混合工程 S 1 2 0 では、まず、バインダ 1 2 1 としてのメチルセルロース粉末、スラリー状のバージン原料 7 0 から得た粉末及び上記粉碎粒子 7 4 それぞれを、高圧エアにより各エア圧送管 1 2 2 ~ 1 2 4 内を圧送して混合室 1 2 5 内に供給する。なお、本例では、パドルドライヤー、流動層乾燥機、スプレードライヤー等のスラリー乾燥機を用いて上記粉末を得た。

#### 【0057】

そして本例では、バージン原料 7 0 と、該バージン原料 1 0 0 重量部に対して 1 0 重量部の粉碎粒子 7 4 とを合わせて、混合工程 S 1 2 0 におけるセラミック化原料 7 1 とした。

また、本例のごとく、バージン原料 7 0 と、粉碎粒子 7 4 と、バインダ 1 2 1 とを同時に混合しても良い。そして、その混合する過程において、上記セラミック化原料 7 1 が生成されると把握することもできる。これに代えて、バージン原料 7 0 と、粉碎粒子 7 4 とを、予め混合しておき上記セラミック化原料 7 1 とした後、このセラミック化原料 7 1 とバインダ 1 2 1 とを混合することもできる。

#### 【0058】

そして、混合室 1 2 5 内に所定量の乾燥状態にある粉末状の各原料を投入した後、エア圧送装置 1 2 6 から混合室 1 2 5 内へ高圧エアを噴射する。そして、この高圧エアにより、各原料粉末を混合室 1 2 5 内に飛散させることにより、各原料粉末を略均一に混合した上記混合原料 7 2 を生成する。

#### 【0059】

次に、上記加湿工程 S 1 3 0 では、混合原料 7 2 に混合液 1 3 1 を加えて加湿原料 7 3 を生成する。本例では、上記混合液 1 3 1 として、ポリオキシエチレン・ポリオキシプロピレン・モノブチルエーテルと水とを混合した液を使用した。

この混合液 1 3 1 によれば、加湿原料 7 3 の潤滑性を向上し、上記成形工程 S 1 4 0 における押し出し性、成形性を良好にできる。

#### 【0060】

次に、成形工程 S 1 4 0 では、図 4 に示すごとく、成形機 1 4 を用いてセラミック成形体 8 8 の押出成形を実施する。この成形機 1 4 は、加湿原料 7 3 を混練する混練機 1 4 3、1 4 5 と、後述する成形型 4 4 3 に向かって加湿原料 7 3 を

押し出すスクリー式押出機 141 とからなる。

#### 【0061】

混練機 143 及び押出機 141 は、図 4 に示すごとく、円筒状の枠体 431、441 と、スクリー片 435、445 を螺旋状に巻回してなるスクリー 432、442 とを有している。

また、混練機 145 は、同図に示すごとく、円筒状の枠体 451 と、スクリー 452 とを有している。このスクリー 452 は、両端部にスクリー片 455 を巻回してなるスクリー部 456 と、外周全周に渡って略一定幅のせん断溝 459 を形成した略円筒状の大径部 458 とを有している。そして、枠体 451 の内周面には、上記せん断溝 459 に食い込むように、リング状に突出するせん断歯 457 を形成してある。

#### 【0062】

本例の混練機 145 には、図 4 に示すごとく、せん断溝 459 とせん断歯 457 とを組み合わせたせん断部 454 を、軸方向 2 カ所の位置に形成してある。

なお、スクリー 432、442、452 は、それぞれ後端側に接続された図示しないモータによって回転されるように構成してある。

#### 【0063】

また、混練機 145 の枠体 451 の上部には、図 4 に示すごとく、投入された原料を内部に押し込むよう構成した押込ローラ 459 を備えた材料投入口 145 を開口させてある。そして、材料投入口 145 から投入された加湿原料 73 等を混練し、濾過器 453 に向けて押し出すように、混練機 145 を構成してある。

ここで、スクリー 452 の大径部 458 の外周に配置したせん断部 454 は、該せん断部 454 の奏するせん断作用により、内部の加湿原料 73 を十分に混練できるように構成してある。

#### 【0064】

また、上記混練機 143 の枠体 431 の上部には、図 4 に示すごとく、押込ローラ 439 を備えた材料投入口 144 を開口してある。そして、混練機 145 から押し出された加湿原料 73 は、材料投入口 144 を経て混練機 143 に供給されるように構成してある。

## 【0065】

また、混練機143は、図4に示すごとく、混練した加湿原料73を先端の濾過器433に向けて押し出し、押出機141の材料投入口146に供給するように構成してある。なお、この押出機141には、材料投入口146周辺を脱気する真空ポンプ149を接続してある。そして、脱気により、加湿原料73への空気の巻き込みを抑制できるよう構成してある。

## 【0066】

押出機141は、混練機143によって混練された加湿原料73を、さらに成形型443に向けて前進させるよう構成してある。本例では、作製するセラミック成形体88の隔壁82に対応する格子状のスリット444を、成形型443の内部に形成してある。

そして、スリット444を備えた成形型443の内部構造に基づいて、ハニカム構造体としてのセラミック成形体88を成形できるように、押出機141を構成してある。

## 【0067】

次に、押出成形したセラミック成形体88を上記乾燥工程S150に投入する。この乾燥工程S150は、マイクロ波発生器を備えた乾燥槽からなる図示しない乾燥装置を用いて実施した。

この工程では、予め、上記乾燥槽に投入できるようセラミック成形体88を適宜切断する。本例では、図5に示すごとく、ワイヤ151の進退運動によって粘土質のセラミック成形体88を切断するよう構成したワイヤ切断機15を使用した。

そして、切断したセラミック成形体88を、上記乾燥槽に投入してマイクロ波を照射する。マイクロ波を照射することで、粘土質のセラミック成形体88が含有する水分を蒸散させ、セラミック成形体88を乾燥させる。

## 【0068】

次に、上記のごとく、乾燥した上記セラミック成形体88の両端面を修正するため上記切断工程S160を実施する。この工程では、乾燥されたセラミック成形体88の両端面を切り落として、最終製品としてのコージェライトセラミック



体 8（図 2）となるセラミック成形体 88 を得る。

すなわち、乾燥後のセラミック成形体 88 では、ワイヤ切断機 15 により切断した際の歪みが両端付近の隔壁 82 等に残っている。そこで、両端の不要部 888 を適宜、切り落とすことにより、歪みの少ない隔壁 82 からなる端面を露出させると共に、セラミック成形体 88 の長さを最終製品としての寸法に合致させる。

本例では、図示しないダイヤモンドカッターにより乾燥後のセラミック成形体 88 を切断した。

#### 【0069】

次に、上記焼成工程 S170 を実施して、上記セラミック成形体 88 を焼成して最終製品としてのコージェライトセラミック体 8 を作製する。

一方、上記切断工程 S160 の後工程として、上記再生工程 S180 を実施する。この再生工程 S180 では、回収した上記不要部 888 を粉砕して、所定の粒径範囲の粒子からなる粉砕粒子 74 を生成する。

#### 【0070】

本例の再生工程 S180 は、図 1 に示すごとく、粉砕処理 S181 と、分級処理 S182 とからなる。粉砕処理 S181 は、図 6 に示すごとく、粉砕羽 182 を外周面に有する 2 本一対の回転体 181 を、略平行に配置してあると共に、5 mm 角の網目を有するメッシュ 189 を回転体 181 の下流側に配置したロールクラッシャ 18 を用いて実施した。

#### 【0071】

このロールクラッシャ 18 は、図 6 に示すごとく、一対の回転体 181 の間隙に投入された不要部 888 を内方に引き込むように、各回転体 181 を回転させるように構成してある。そして、回転体 181 の回転動作により、不要部 888 をメッシュ 189 にこすりつけ、メッシュを通過させることにより、粒径 5 mm 以下の粒子が得られるように構成してある。

#### 【0072】

そして、上記分級処理 S182 では、図 6 に示すごとく、1 辺 1 mm の略正方形を呈する網目を有する濾過網を備えた濾過器 188 を用いて、再生セラミッ

ク化原料としての上記粉碎粒子 74 を生成した。

ここでは、上記粉碎処理 S181 で得られた粒子を上記濾過器 188 により分級、除去し、該濾過器 188 に残留したものを上記粉碎粒子 74 とした。本例の分級処理 S182 によれば、粒径 1 mm 以上の鱗片状の粉碎粒子 74 を生成することができる。

そして、本例の製造方法では、上記のごとく、上記混合工程 S120 のセラミック化原料 71 の一部として、生成した粉碎粒子 74 を再利用する。

#### 【0073】

以上のように、本例のコージェライトセラミック体 8 の混合工程 S120 では、上記再生工程 S180 により生成した上記粉碎粒子 74 及びバージン原料 70 からなる上記セラミック化原料 71 と、上記バインダ 121 としてのメチルセルローズとを混合して上記混合原料 72 を生成する。

#### 【0074】

そのため、上記乾燥後のセラミック成形体 88 から切り落とした上記不要部 88 を再利用することができ、生産効率が高い。

また、上記混合工程 S120 は、バージン原料 70 のみを取り扱う既設の製造装置を、流用することができ効率的である。

#### 【0075】

さらに、本例の再生工程 S180 では、上記不要部 888 を、粒径 1 ~ 5 mm の粒子に粉碎、分級し、粉碎粒子 74 を生成する。

粒径 1 mm 以上の鱗片状の粉碎粒子 74 では、後述する実施例 2 に示すごとく、上記不要部 888 に含まれていた一次粒子が微細化されるおそれが少なく、作製されたコージェライトセラミック体 8 の熱膨張係数の劣化も少ない。

さらに、粒径 5 mm 以下の粉碎粒子 74 によれば、エア圧送による搬送時にもエア抜け等を生じるおそれが少なく、効率良く上記ミキシング装置へ搬送することができる。

#### 【0076】

(実施例 2)

本例では、実施例 1 における再生セラミック化原料としての上記粉碎粒子の粒

径を 1 mm 以上に維持する効果を明らかにすべく、種々の実験及びその実験データを用いて説明する。

第 1 の実験としては、乾燥後のセラミック成形体から生じた上記不要部を、平均粒径 0. 2 mm ～ 6 mm までの粒径の異なる数種の粉碎粒子に粉碎した。そして、それぞれの粉碎粒子のみからなるセラミック化原料からコーゼライトセラミック体を作製した。

そして、各コーゼライトセラミック体の熱膨張係数を測定した結果、粉碎粒子の粒径と、作製したコーゼライトセラミック体の熱膨張係数との間には高い相関関係があることを見出すことができた。

#### 【 0 0 7 7 】

すなわち、適用した粉碎粒子の平均粒径を横軸に、作製したコーゼライトセラミック体の熱膨張係数を縦軸に示す図 7 によれば、粉碎粒子の平均粒径が 1 mm 未満の範囲では、コーゼライトセラミック体の熱膨張係数が急激に劣化（大きくなる）していることがわかる。なお、同図に示す熱膨張係数としては、4 0 ～ 8 0 ℃ の範囲における熱膨張係数を示してある。

そして、同図によれば、粉碎粒子の粒径を大きくしていくと熱膨張係数が小さくなる傾向があるが、平均粒径を 5 mm としてもバージン原料のみからなるコーゼライトセラミック体の熱膨張係数（同図中、点線で示す。）には及ばないことがわかる。

#### 【 0 0 7 8 】

そこで、第 2 の実験として、粉碎粒子の粒径と熱膨張係数との相関の原因を解明するため、粒径が相違する 2 種の粉碎粒子からなる 2 種のセラミック化原料に、どのような相違点が存在するかを調べた。

ここでは、粒径 1 mm 以上に分級した粉碎粒子及び、粒径 1 mm 未満に分級した粉碎粒子それぞれからなるセラミック化原料について諸特性を分析した。

#### 【 0 0 7 9 】

その結果、上記のごとく粒径が異なる粉碎粒子からなる 2 種のセラミック化原料では、図 8 に示すごとく、一次粒子の粒子径分布が大きく異なっていることが判明した。

すなわち、横軸に一次粒子の粒子径を示し、縦軸に出現率を示す同図によれば、粒径 1 mm 以上の粉碎粒子からなるセラミック化原料（同図中、実線で示す。）では、およそ  $19\ \mu\text{m}$  の粒子径に出現率のピークが現れるのに対して、粒径 1 mm 未満の粉碎粒子からなるセラミック化原料（同図中、点線で示す。）では、 $19\ \mu\text{m}$  付近のピークが抑制されている。

つまり、粒径 1 mm 未満の粉碎粒子からなるセラミック化原料では、一次粒子が微細化されている。

#### 【0080】

一方、図 9 に示すごとく、第 3 の実験として、実施例 1 に適用したバージン原料を構成する各成分ごとの一次粒子の粒子径分布を調べた。同図中、横軸には一次粒子の粒子径を示し、縦軸には出現率を示している。

なお、同図には、タルク、カオリン及びアルミナの各一次粒子径分布を、それぞれ実線、2 点鎖線、点線により示してある。

バージン原料の粒子径分布における  $19\ \mu\text{m}$  付近に現れる出現率ピーク（図 8）は、成分比率 38 重量部であるタルクの一次粒子径分布の出現率ピークが顕在化したものであることが、図 9 に示す粒子径分布から明確に把握できる。

#### 【0081】

そこで、一次粒子径の微細化が及ぼす影響を調べる第 4 の実験として、一次粒子径の出現率ピークを  $9.5\ \mu\text{m}$  付近に微細化したタルクを含むセラミック化原料と、 $19\ \mu\text{m}$  付近に出現率ピークを有するタルクを含むセラミック化原料とを準備した。そして、両方のセラミック化原料から作製したコージェライトセラミック体の諸特性を比較した。

#### 【0082】

その結果、図 10 に示すごとく、タルクの一次粒子径の大きさは、コージェライトセラミック体における一次粒子の配向の度合いを表す配向度と、熱膨張係数とに重大な影響を有することがわかった。

同図中、横軸にはコージェライトセラミック体の熱膨張係数を示し、縦軸には一次粒子の配向度を示している。なお、この配向度とは、 $(110)$  面の X 線強度を、 $(002)$  面の X 線強度と  $(110)$  面の X 線強度との和により除して求

まる値である。

#### 【0083】

同図によれば、出現率ピークを  $9.5 \mu\text{m}$  付近に有するタルクを含むコーゼライトセラミック体（同図中、黒プロット点で示す）では、平均粒子径  $19 \mu\text{m}$  のタルクよりなるコーゼライトセラミック体（同図中、白抜きプロット点で示す）と比較して、一次粒子の配向度が小さくなり、熱膨張係数が大きくなっているという傾向がある。

すなわち、図10によれば、セラミック化原料の一次粒子の微細化により配向度が低下し、配向度の低下に起因して熱膨張係数が大きくなるというコーゼライトセラミック体の品質低下のメカニズムが実証されている。

#### 【0084】

本例の各実験を通じて、以下のような知見を得ることができる。

すなわち、図10に示すごとく、セラミック化原料の一次粒子径が、該セラミック化原料からなるコーゼライトセラミック体の熱膨張係数を左右しており、一次粒子径が小さくなると熱膨張係数が劣化する傾向にある。

#### 【0085】

また、図8に示すごとく、セラミック化原料の一次粒子径と、粉碎粒子の粒径との間には、有意な相関関係がある。すなわち、粉碎粒子の粒径を微細化すると、セラミック化原料の一次粒子径が小さくなる傾向にある。

そしてさらに、粉碎粒子の粒径を  $1\text{mm}$  以上とすれば、一次粒子の微細化を抑制することができる。

#### 【0086】

さらに、第5の実験として粒径の異なる数種の粉碎粒子を基にして、上記成形工程において形成した加湿原料の粘度を測定した。その結果、図11に示すごとく、粉碎粒子の粒径と、上記加湿原料の粘度との間には高い相関関係があることを見出すことができた。

#### 【0087】

すなわち、適用した粉碎粒子の平均粒径を横軸に、加湿原料の粘度を縦軸に示す同図によれば、粉碎粒子の平均粒径が  $1\text{mm}$  未満の範囲では、加湿原料の粘度

が急激に低下することがわかる。

一方、粉碎粒子の粒径が1mm以上の範囲では、加湿原料の粘度が安定している。

#### 【0088】

発明者らは、加湿原料の粘度が低下する原因は、バインダとしてのメチルセルロースのヒドロキシプロポキシ基を相互に結合させているエーテル結合が切断されて劣化するためであると推定する。

それ故、粉碎粒子を細かくするほどエーテル結合が切断されていき、バインダとしてのメチルセルロースが劣化して上記加湿原料の粘性が低下していく。図11によれば、この傾向は、粉碎粒子1mm未満の領域で顕在化し、粉碎粒子1mm以上では影響が少ない。

#### 【0089】

このように、粉碎粒子の粒径を1mm以上とすることにより、バインダとして含有されるメチルセルロースの劣化を抑制することができる。

そして、バインダの劣化を抑制することにより上記不要部中のバインダとしてのメチルセルロースも再生可能にでき、上記製造工程全体における再生効率をさらに向上できる。

#### 【0090】

(実施例3)

本例は、実施例1のコーージェライトセラミック体の製造工程を基にして、上記混合工程における粉碎粒子の含有比率による影響を調べた例である。

本例では、上記混合工程の上記セラミック化原料全体に占める粉碎粒子の含有率を0重量部～100重量部の間で変更して製造したコーージェライトセラミック体について熱膨張係数を調べた。

#### 【0091】

粉碎粒子の含有比率を横軸に、製造されたコーージェライトセラミック体の熱膨張係数を縦軸に表す図12に示すごとく、セラミック化原料中の粉碎粒子の含有率を増やすにつれて、該セラミック化原料から作製したコーージェライトセラミック体の熱膨張係数が大きくなることがわかる。

## 【0092】

そして、同図中、1～5 mmの粒径の粉碎粒子に関するデータ（実線及び菱形プロットで示す）によれば、バージン原料のみからなるコージェライトセラミック体の熱膨張係数に対して10%以内の劣化（同図中、一点鎖線で示す範囲。）に抑制するためには、上記粉碎粒子の含有率を30重量部以下に維持する必要があることがわかる。

## 【0093】

なお、図12には、参考として、粒径0.5～1 mmに粉碎した粉碎粒子を含むセラミック化原料から作製したコージェライトセラミック体の熱膨張係数の変化（点線及び黒丸プロットで示す。）を示してある。粉碎粒子の粒径が小さい場合には、熱膨張係数の劣化が大きいという実施例2の結果を裏付けている。

## 【0094】

さらに、上記粉碎粒子を含有するセラミック化原料を加湿した上記加湿原料の粘度を実験的に調べ、その結果を図13に示す。同図横軸には粉碎粒子の含有率を表し、縦軸には加湿原料の粘度を表してある。

なお、本例の混合工程においては、セラミック化原料におけるバージン原料の含有量に応じたメチルセルロースのみ混合している。粉碎粒子中で生じているおそれがあるバインダの劣化を顕在化させるためである。

そのため、粉碎粒子のバインダに劣化を生じている場合には、その劣化の程度は、上記加湿原料の粘度の低下として顕在化することになる。

## 【0095】

同図によれば、粒径1～5 mmの粉碎粒子（実線で示す）によれば、混合工程における含有率を変更しても上記加湿原料の粘度の変動が少ない。粒径1～5 mmの粉碎粒子では、バインダの劣化を抑制できるからである。

なお、参考として、粒径0.07～0.5 mmの粉碎粒子（同図中、点線で示す）について、同様の実験による結果を示してある。この実験結果によれば、粒径0.5 mm以下の微細な粉碎粒子では、バインダの劣化による加湿原料の粘度の低下が明らかである。

## 【0096】

なお、上記粉碎粒子の含有率を 30 重量部以下に維持すると、バインダの劣化を抑制できる他、上記加湿工程で巨大な 2 次粒子が生成されるのを抑制できるという効果を得ることができる。

そして、粉碎粒子が凝集した巨大な 2 次粒子の生成を抑制することで、成型型の目詰まりや成型機の詰まり等のトラブルが発生するおそれを抑制することができる。

#### 【0097】

再生セラミック化原料としての粉碎粒子を利用する製造方法では、上記加湿工程において巨大な 2 次粒子が生成され易い。発明者らは、この原因は、粉碎粒子中のバインダにあると考えている。

バージン原料と新品のバインダとを混合した混合原料では、図 14 に示すごとく、セラミック化原料の一次粒子 707 と、バインダ 121 の一次粒子 709 とが個別に存在している。

#### 【0098】

一方、再生セラミック化原料としての粉碎粒子 74 では、図 15 に示すごとく、一旦溶けて薄膜化したバインダ 121 により被われた一次粒子 708 が凝集して 2 次粒子 704 が形成されている。そして、加湿工程において、2 次粒子 704 と混合液とが触れ合うと、薄膜状のバインダ 121 が粘着性を生じ、2 次粒子 704 全体が粘着性を発揮するに至る。

そして、2 次粒子 704 どうしの相互接着が、さらに巨大な 2 次粒子を生成する原因となっている。

#### 【0099】

そこで、上記のごとく、バージン原料 100 重量部に対する粉碎粒子 74 の含有率を 30 重量部以下とすれば、図 16 に示すごとく、2 次粒子 704 に対して、バージン原料の一次粒子 707 をリッチな状態にできる。

この状態では、バージン原料の一次粒子 707 を、2 次粒子 704 の外周に付着させることができる。そして、このように生成された 2 次粒子 705 にあつては、その外表面は接着性を発揮せず、さらに巨大するおそれは少ない。

#### 【0100】



## (実施例 4)

本例は、実施例 1 のコージェライトセラミック体 8 の製造方法における再生セラミック化原料の生成方法を変更した例である。

本例では、実施例 1 の再生セラミック化原料としての上記粉碎粒子に代えて、上記不要部 888 を粉体化した再生パウダー 75 を適用した。また、実施例 1 の再生工程に代えて、本例では、粉体化工程 S190 を実施した。この内容について、図 17～図 19 を用いて説明する。

## 【0101】

本例の混合工程 S120 では、図 17 に示すごとく、バインダ 121 としてのメチルセルロース粉末、バージン原料 70 及び上記再生パウダー 75 を混合して上記混合原料 72 を生成した。

すなわち、本例では、バージン原料 70 及び、該バージン原料 70 に対して 30 重量部の再生パウダー 75 からなる原料を、上記混合工程 S120 に適用するセラミック化原料 71 とした。

## 【0102】

なお、本例では、混合工程 S120 のセラミック化原料 71 中の再生パウダー 75 の含有率に応じて、バインダ 121 の投入量を調整した。すなわち、後述する焼成により結晶水が蒸散した再生パウダー 75 では、潤滑性が不足するおそれがあり、バインダ 121 の増量により補うためである。

本例では、バージン原料 70 に対する適正なバインダ 121 の投入比率に比べて、再生パウダー 75 に対する適正なバインダ 121 の投入比率を大きく設定した。

なお、上記バインダ 121 の増量に代えて、加湿工程 S130 の混合液 131 の投入量を増量することにより、再生パウダー 75 の結晶水による影響を補うこともできる。

## 【0103】

本例では、図 17 に示すごとく、再生セラミック化原料を生成するため、上記切断工程 S160 の後工程として粉体化工程 S190 を実施する。

本例の粉体化工程 S190 では、回収した不要部 888 を焼成して再生パウダ

ー 75 を生成する。

#### 【0104】

粉体化工程 S190 では、図示しない電気炉により、700℃雰囲気中で上記不要部 888 を焼成する。そして、不要部 888 に含まれるバインダ 121 としてのメチルセルロースを消失させることにより、不要部 888 からパウダー状の再生パウダー 75 を生成する。

そして、上記のごとく、混合工程 S120 において、生成した再生パウダー 75 を再利用する。

#### 【0105】

このように本例のコージェライトセラミック体 8 の製造工程では、上記粉体化工程 S190 において、切断工程 S160 から回収した不要部 888 を焼成して粉体化し、パウダー状の再生パウダー 75 を再生する。

そして、この粉体化工程 S190 では、不要部 888 を粉砕等することがなく一次粒子を破壊するおそれが少ない。

そのため、この再生パウダー 75 を含むセラミック化原料 71 から作製したコージェライトセラミック体 8 と、バージン原料 70 から作製したコージェライトセラミック体 8 との間で、両原料中の一次粒子の粒径の相違に起因して熱膨張係数の相違を生じるおそれが少ない。

さらに、混合工程 S120 において再生パウダー 75 とバージン原料 70 とを混合する本例の製造方法は、バージン原料による既存の製造装置を流用でき効率的である。

#### 【0106】

また、本例では、再生パウダー 75 と、バージン原料 70 との一次粒子の粒子径分布を調べる実験を行った。その結果、図 18 に示すごとく、再生パウダー 75 (同図中、実線で示す。) とバージン原料 70 (同図中、細線で示す。) との間で、粒子径の分布に大きな差異が現れていないことが判った。なお、同図横軸には、一次粒子の粒子径を示し、縦軸には、出現率を示している。

なお、同図には、参考データとして、実施例 1 の再生セラミック化原料としての上記粉砕粒子 (点線で示す。) の一次粒子径分布を示してある。

## 【0107】

また、さらに、再生パウダー75のみから作製した数個のコージェライトセラミック体8と、バージン原料70のみから作製した数個のコージェライトセラミック体8とについて、熱膨張係数を調べる実験を行った。その結果、図19に示すごとく、試料1として示す再生パウダー75から作製したコージェライトセラミック体の熱膨張係数の分布は、試料2として示すバージン原料70から作製したコージェライトセラミック体の熱膨張係数分布とほぼ一致していることが判った。

なお、同図には、参考データとして、実施例1の再生セラミック化原料としての上記粉碎粒子から作製した数個のコージェライトセラミック体（試料3）の熱膨張係数の分布を示してある。

## 【0108】

このように、上記粉体化工程S190によれば、図18に示すごとく、再生パウダー75中の一次粒子を微細化することがない。

そして、バージン原料70と同等の一次粒子径分布を呈する再生パウダー75によれば、図19に示すごとく、熱膨張係数に優れたコージェライトセラミック体8を作製することができる。

## 【0109】

以上のごとく、上記再生パウダー75のみからコージェライトセラミック体8を作製することも十分可能である。

しかし、その製造工程において生じる廃材としての不要部888の量を考慮すれば、上記混合工程S120の100重量部のバージン原料70に対して、再生パウダー75の含有率を1重量部以上30重量部以下に設定することが好ましい。

## 【0110】

再生パウダー75の含有率が上記範囲にあれば、新たに供給するバージン原料70と、再生パウダー75とを混合したセラミック化原料71から、品質の安定したコージェライトセラミック体8を連続的に効率良く製造することができる。

なお、その他の構成及び作用効果については実施例1と同様である。

## 【0111】

## (実施例 5)

本例は、実施例 1 のコーゼライトセラミック体の製造方法を基にして、上記不要部 888 の再利用の方法及び、上記混合工程に供給する原料組み合わせ等を変更した例である。

本例は、図 20 に示すごとく、上記再生工程を省略して、切断工程 S160 から回収した不要部 888 を直接、利用するよう構成した例である。

そして、混合工程 S120 においては、バージン原料 70 とバインダ 121 としてのメチルセルロースとを混合した混合原料 72 を生成するよう構成してある。

## 【0112】

さらに、本例では、図 21 に示すごとく、加湿工程 S130 と成形工程 S140 とを同時に実施できるよう構成した成形機 140 を利用している。

この成形機 140 は、材料投入口 145 から直接、上記不要部 888 を投入できるように混練トルクを強化してある。

そして、本例のコーゼライトセラミック体 8 の製造方法では、上記混合原料 72 と、混合液 131 と、不要部 888 とを上記成形機 140 に投入して、上記加湿工程 S130 と上記成形工程 S140 とを同時に実施する。

## 【0113】

このように本例の製造方法では、上記不要部 888 に対して何らの処理も施すことなく、成形機 140 により直接、再混練する。そのため、この製造方法によれば、不要部 888 中の一次粒子径の微細化やバインダ 121 の劣化等を生じるおそれが少ない。それ故、この製造方法により作製したコーゼライトセラミック体 8 の品質が低下するおそれが少ない。

## 【0114】

その他の構成及び作用効果については、実施例 1 と同様である。

なお、この製造方法を実施するには、上記の成形機 140 の混練トルクの強化のほか、混練時の発熱量増加の対策として冷却能力の向上等が必要となる場合がある。

**【図面の簡単な説明】****【図 1】**

実施例 1 における、コージェライトセラミック体の製造工程を示す工程図。

**【図 2】**

実施例 1 における、コージェライトセラミック体を示す斜視図。

**【図 3】**

実施例 1 における、原料処理工程の実施の様子を示す説明図。

**【図 4】**

実施例 1 における、成形工程を実施する成形機の構造を示す断面図。

**【図 5】**

実施例 1 における、ワイヤ切断機を示す説明図。

**【図 6】**

実施例 1 における、再生工程を実施する様子を示す説明図。

**【図 7】**

実施例 2 における、粉碎粒子の平均粒径と、コージェライトセラミック体の熱膨張係数との関係を示すグラフ。

**【図 8】**

実施例 2 における、粉碎粒子中の一次粒子径の分布を示すグラフ。

**【図 9】**

実施例 2 における、バージン原料中の各原料成分の一次粒子径の分布を示すグラフ。

**【図 10】**

実施例 2 における、コージェライトセラミック体における一次粒子の配向度と、熱膨張係数との関係を示すグラフ。

**【図 11】**

実施例 2 における、粉碎粒子中の一次粒子の平均粒径と、この粉碎粒子から作製した加湿原料の粘度との関係を示すグラフ。

**【図 12】**

実施例 3 における、セラミック化原料中、バージン原料に対する粉碎粒子の含

有率と、このセラミック化原料から作製したコージェライトセラミック体の熱膨張係数との関係を示すグラフ。

【図 13】

実施例 3 における、セラミック化原料中、バージン原料に対する粉碎粒子の含有率と、このセラミック化原料から作製した加湿原料の粘度との関係を示すグラフ。

【図 14】

実施例 3 における、バージン原料と粉末状のバインダとを混合した混合原料において、一次粒子の状態を示す説明図。

【図 15】

実施例 3 における、粉碎粒子の一次粒子の状態を示す説明図。

【図 16】

実施例 3 における、粉碎粒子の一次粒子と、バージン原料の一次粒子が凝集した 2 次粒子の状態を示す説明図。

【図 17】

実施例 4 における、コージェライトセラミック体の製造工程を示す工程図。

【図 18】

実施例 4 における、再生パウダー中の一次粒子径の分布を示すグラフ。

【図 19】

実施例 4 における、再生パウダーから作製したコージェライトセラミック体の熱膨張係数の分布を示すグラフ。

【図 20】

実施例 5 における、コージェライトセラミック体の製造工程を示す工程図。

【図 21】

実施例 5 における、加湿工程及び成形工程を実施する成形機の構造を示す断面図。

【符号の説明】

121... バインダ,

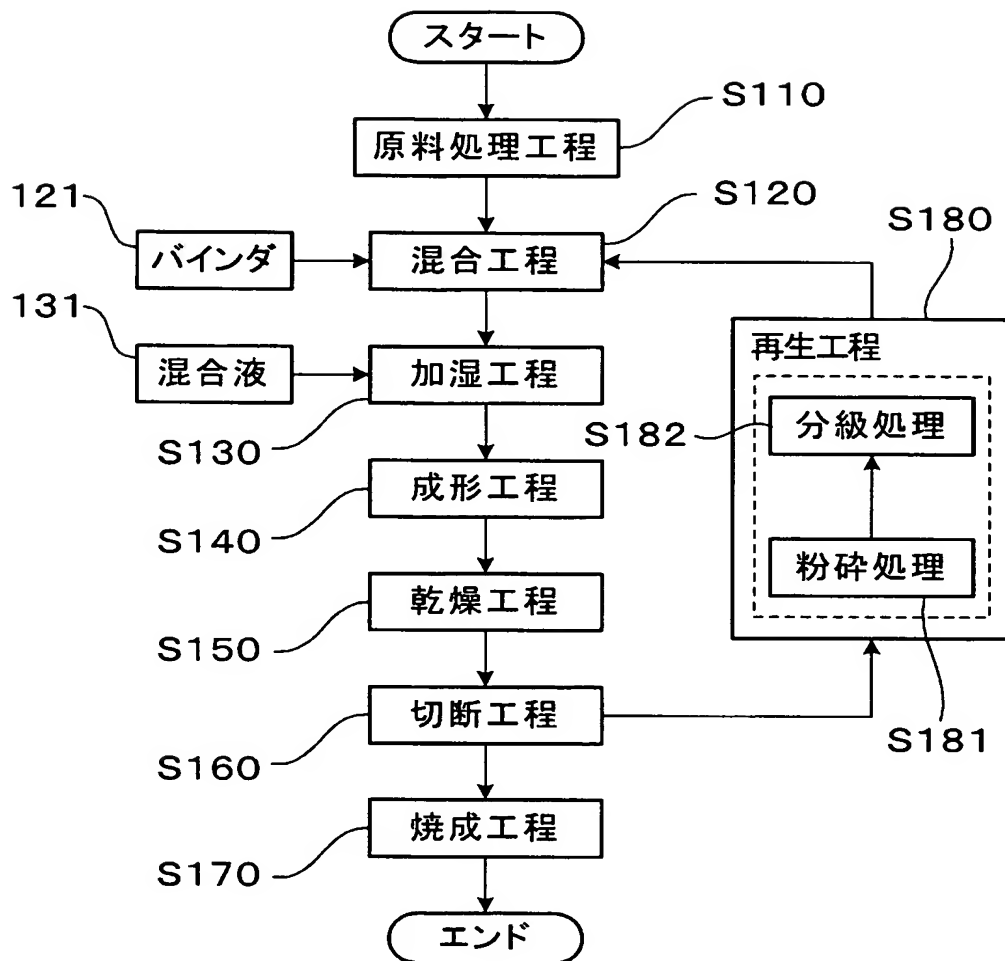
131... 混合液,

- 14, 140... 成形機,
- 15... ワイヤ切断機,
- 70... (新品の) セラミック化原料,
- 71... (混合工程に適用する) セラミック化原料,
- 72... 混合原料,
- 73... 加湿原料,
- 74... 粉碎粒子,
- 704... (粉体粒子の) 1次粒子,
- 705... (粉体粒子の) 2次粒子,
- 75... 再生パウダー,
- 8... コージェライトセラミック体,
- 80... セル,
- 81... 外皮,
- 82... 隔壁,
- 88... セラミック成形体,
- 888... 不要部,

【書類名】 図面

【図 1】

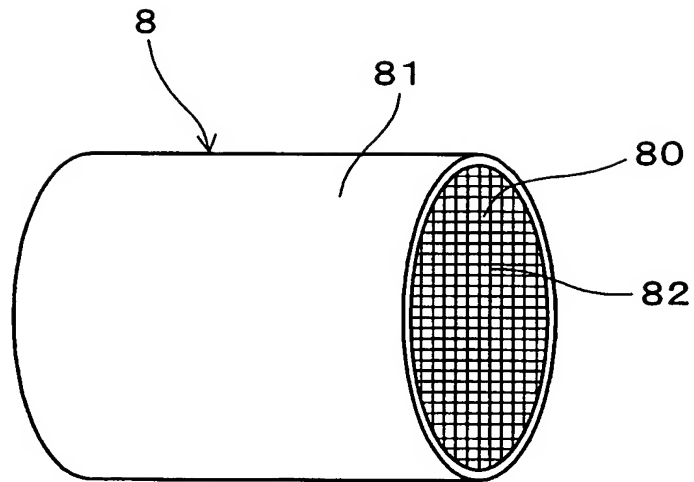
(図 1)





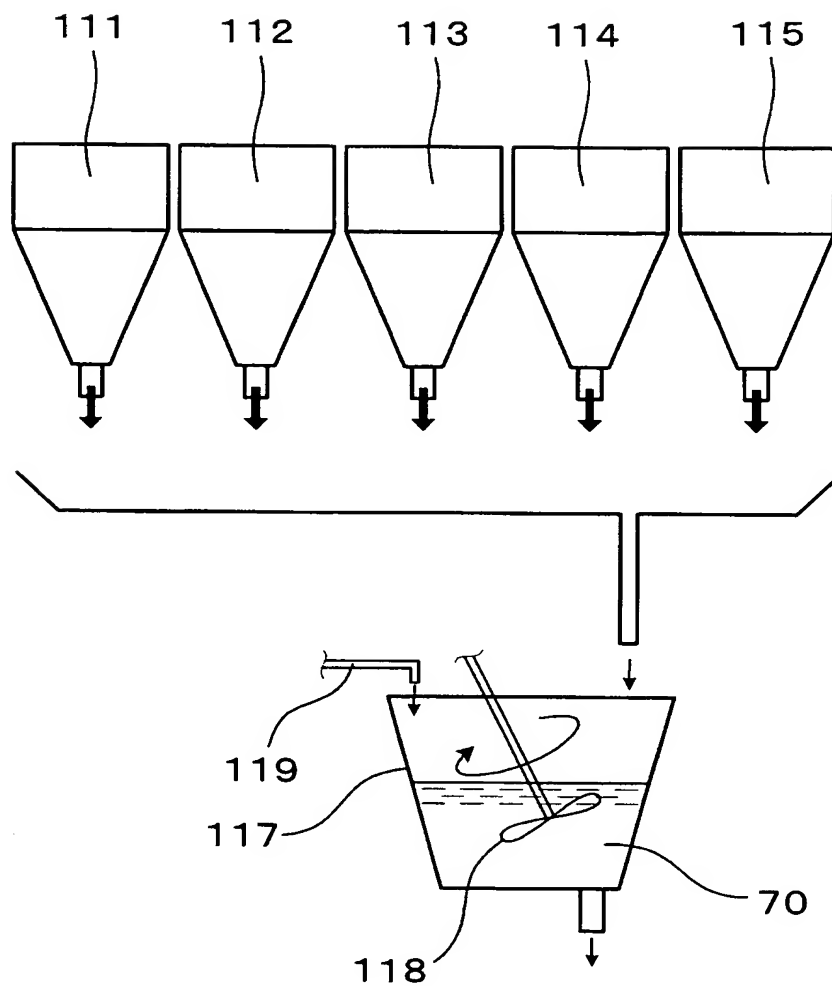
【図 2】

(図 2)



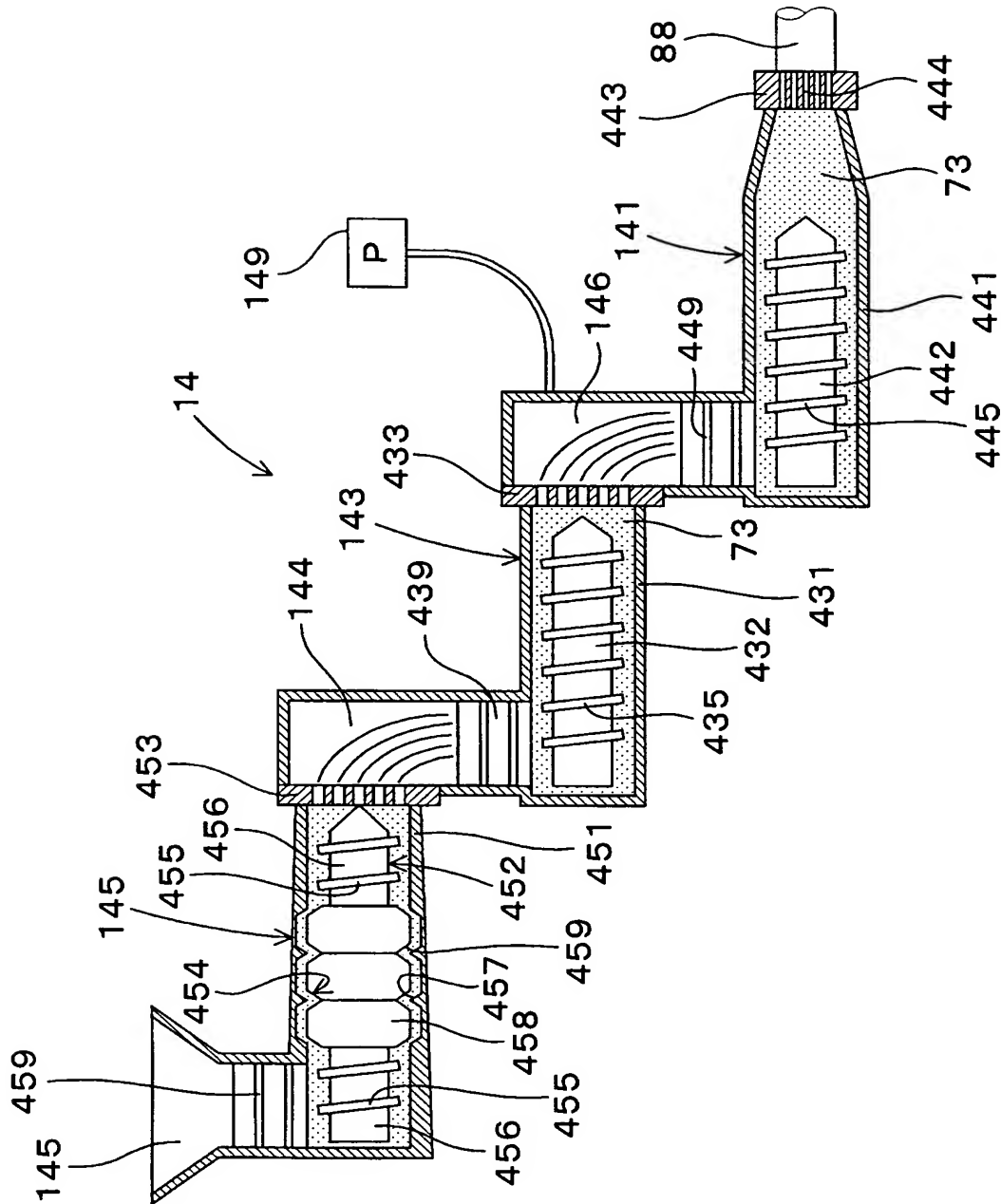
【図 3】

(図 3)



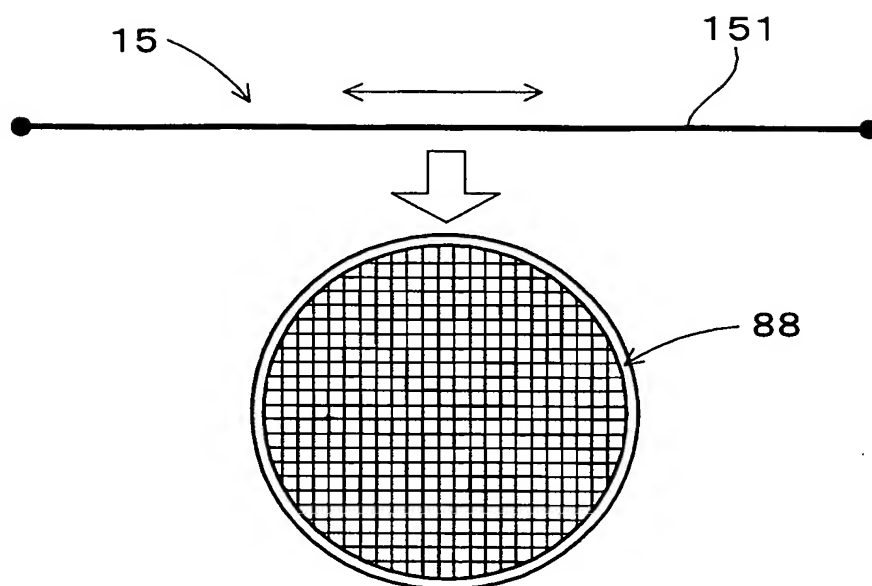
【図 4】

(図 4)



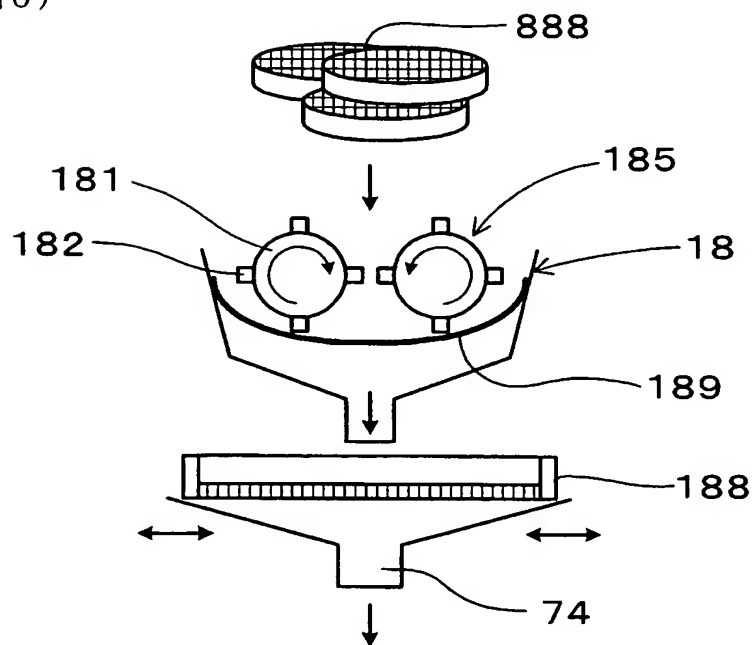
【図 5】

(図 5)



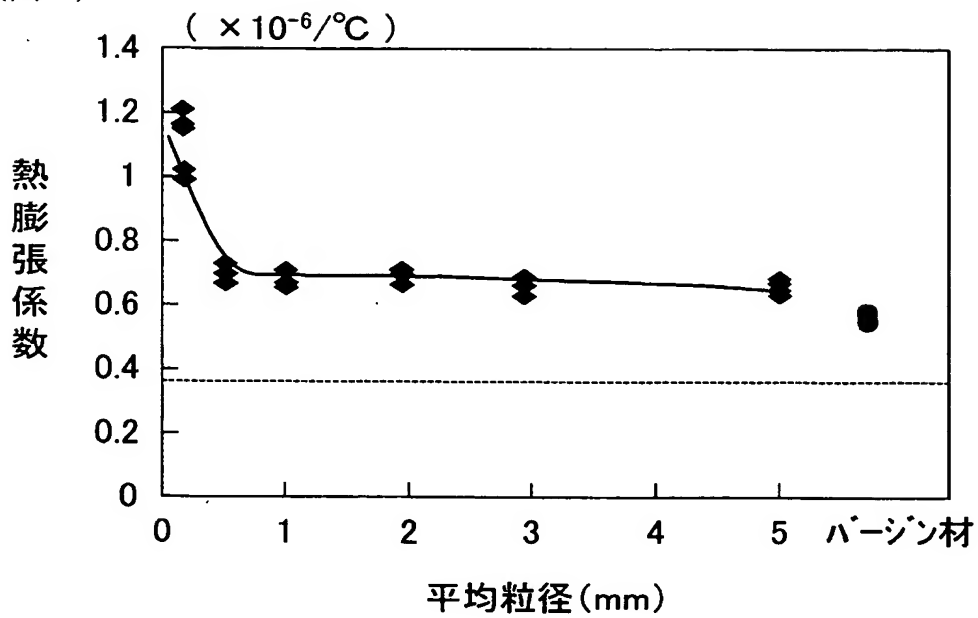
【図 6】

(図 6)



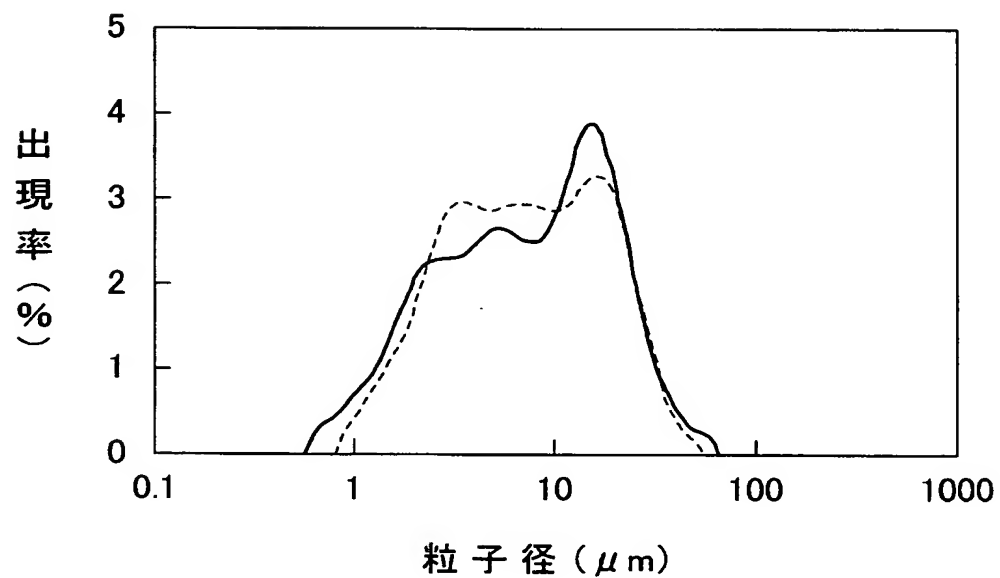
【図 7】

(図 7)



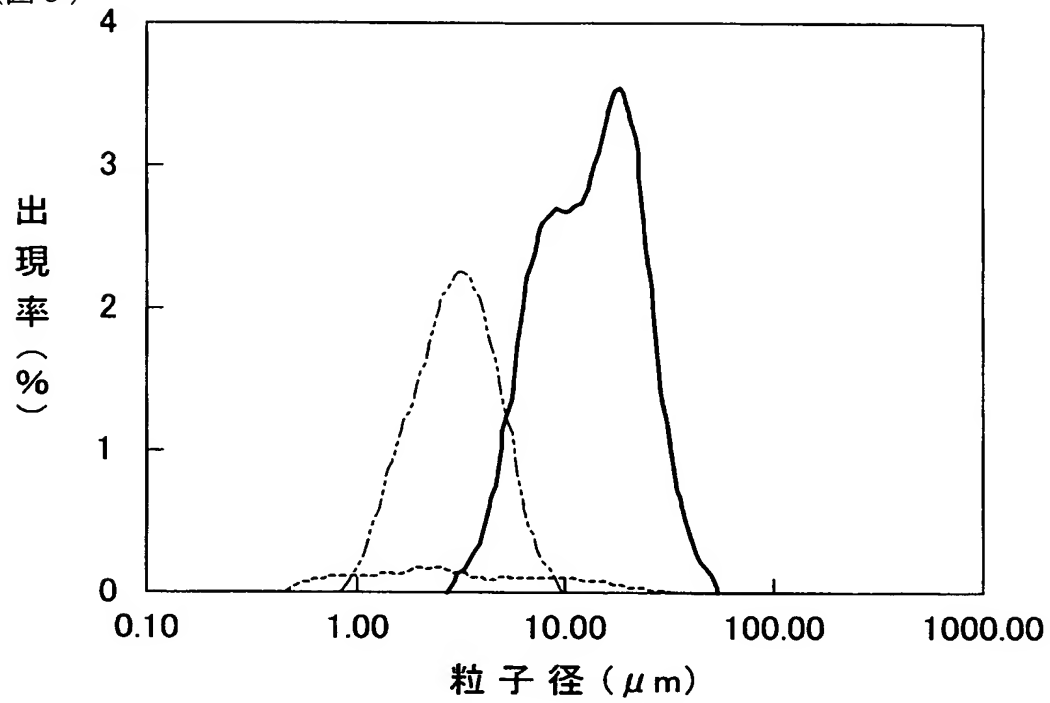
【図 8】

(図 8)



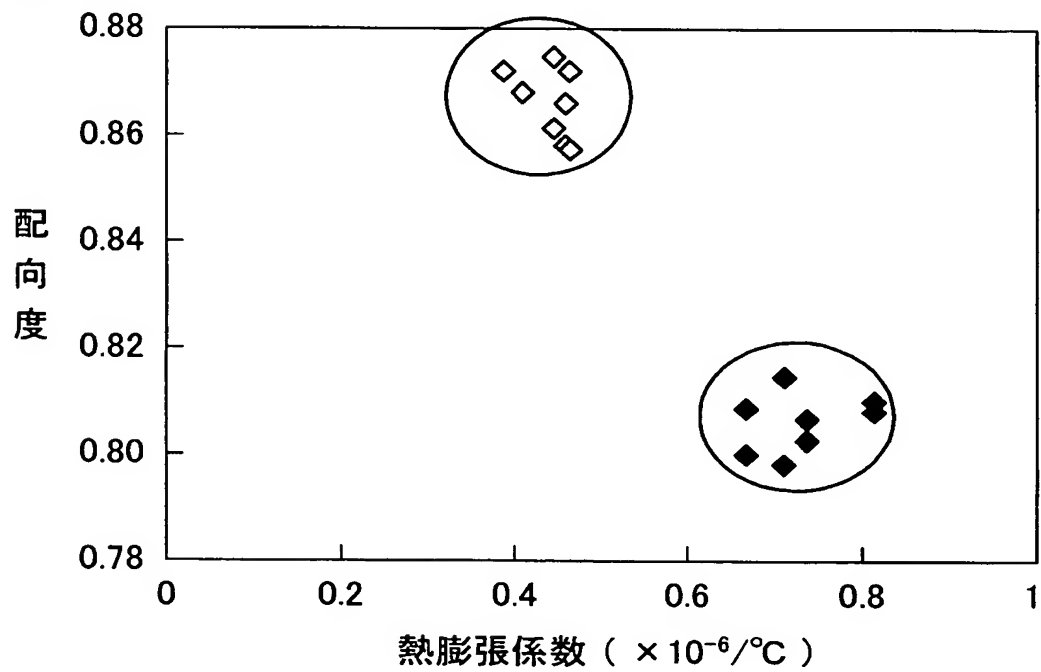
【図 9】

(図 9)



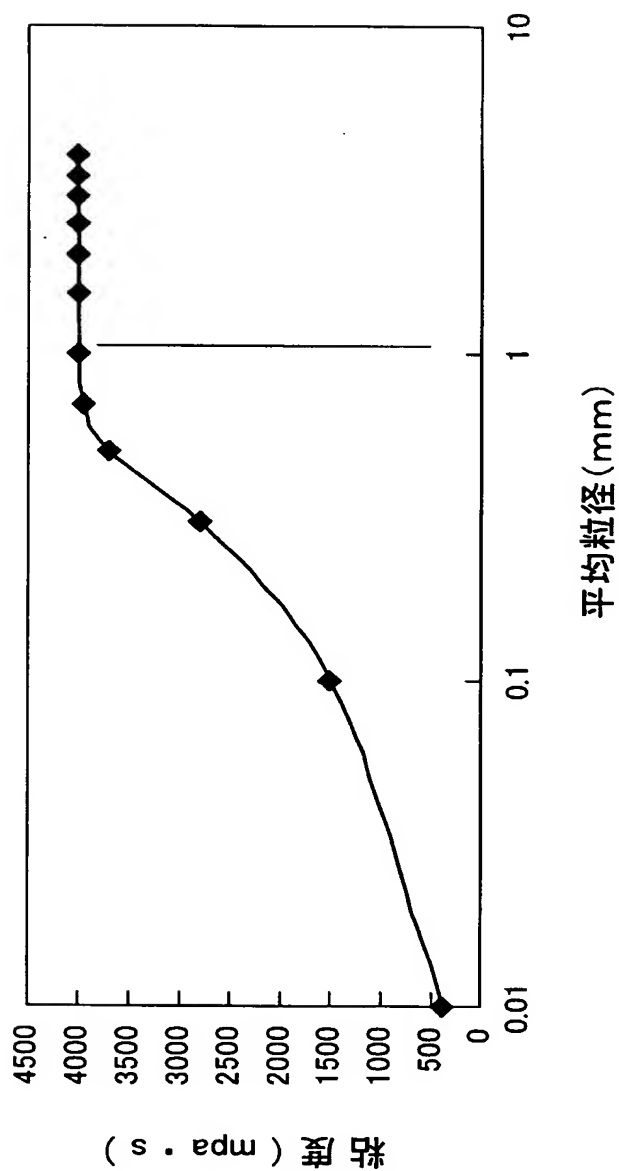
【図 10】

(図 10)



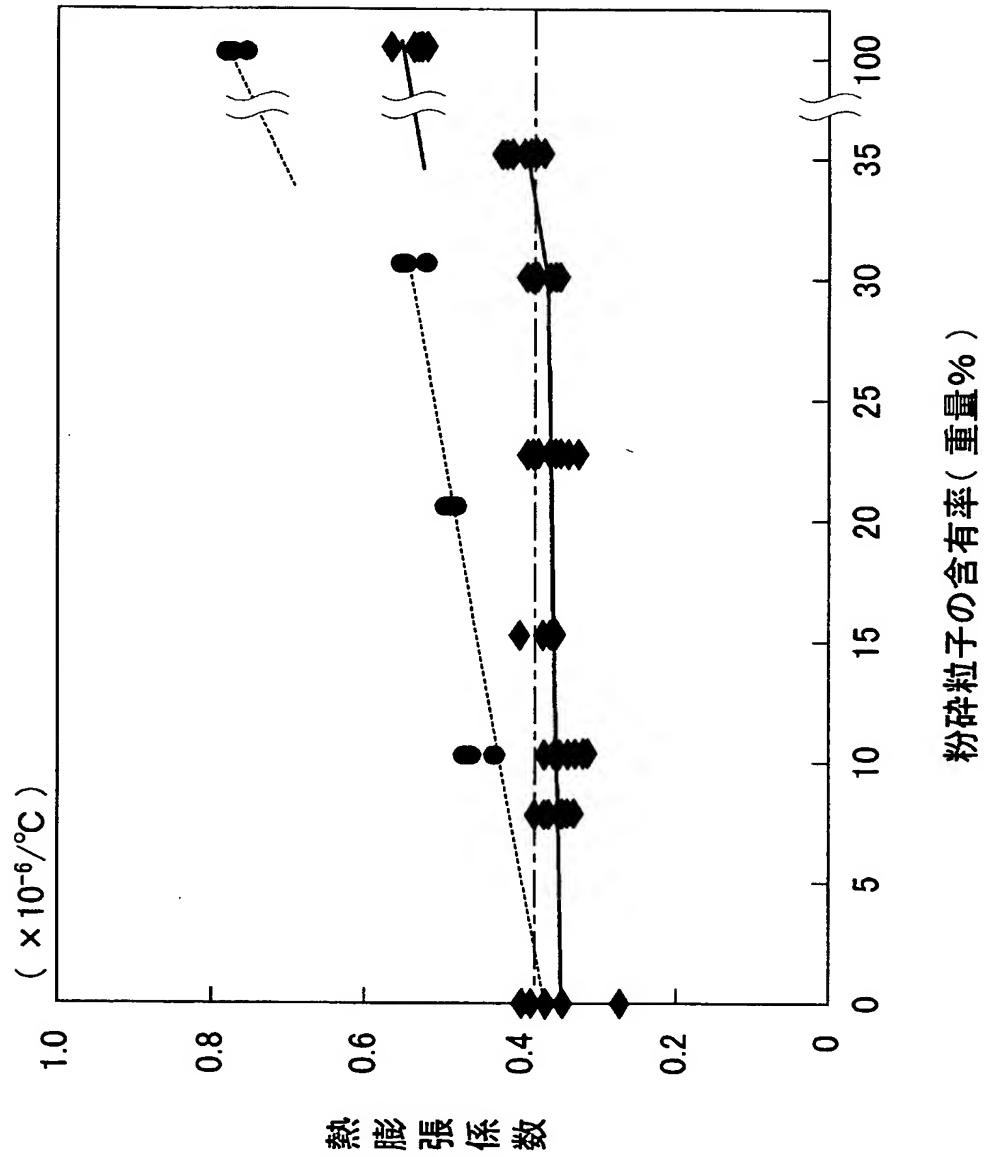
【図 11】

(図 11)



【図 12】

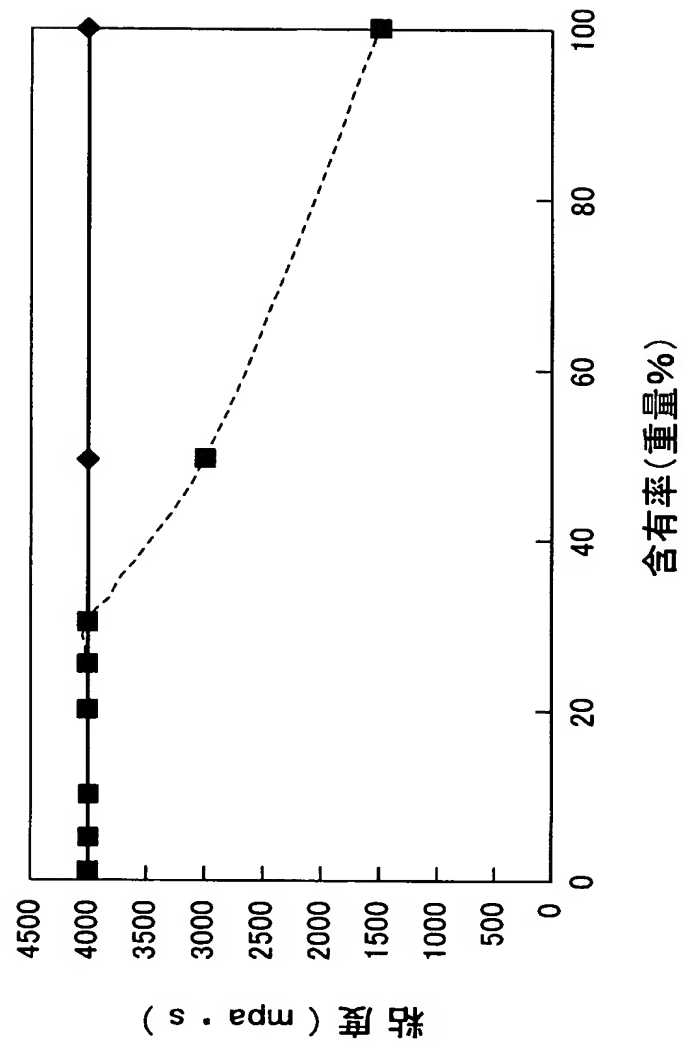
(図 12)





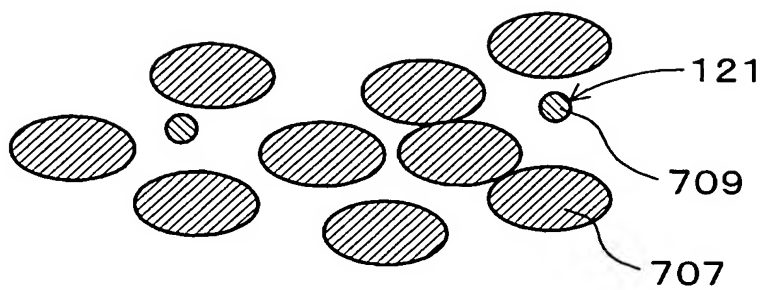
【図 13】

(図 13)



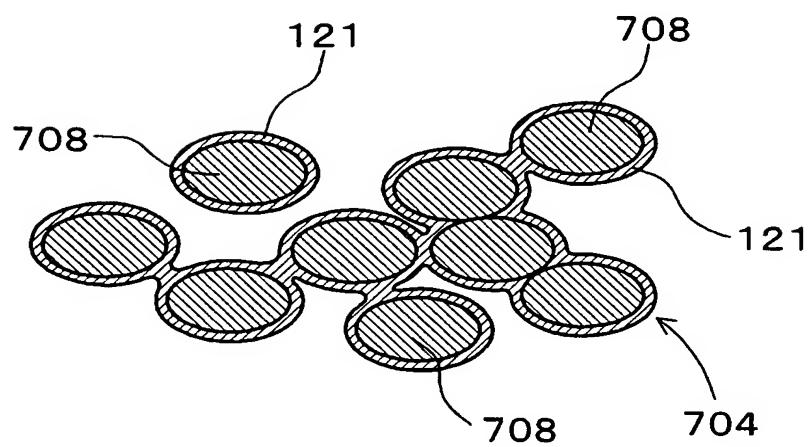
【図 14】

(図 14)



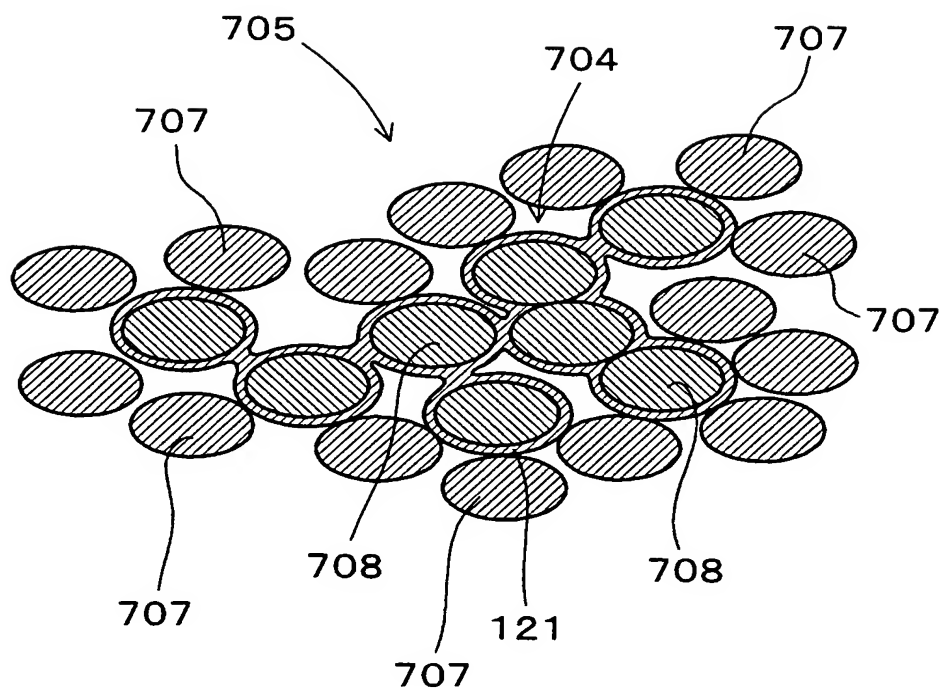
【図 15】

(図 15)



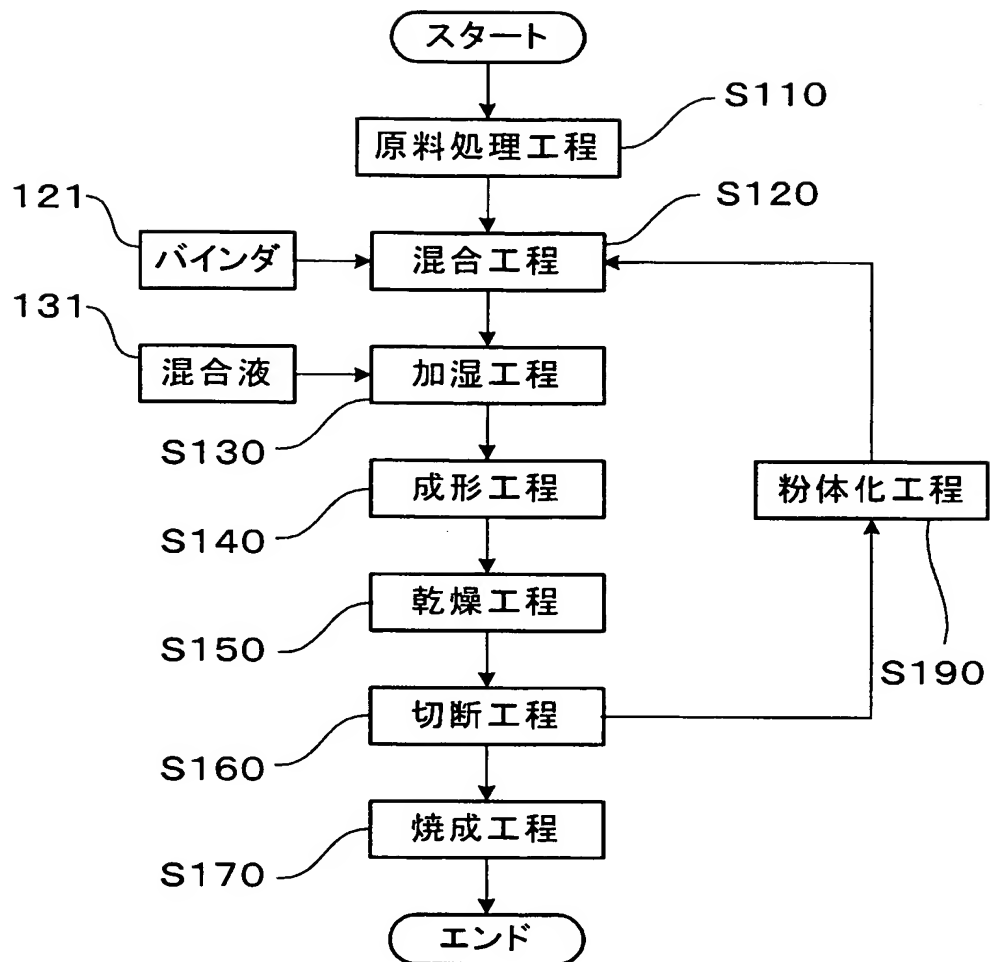
【図 16】

(図 16)



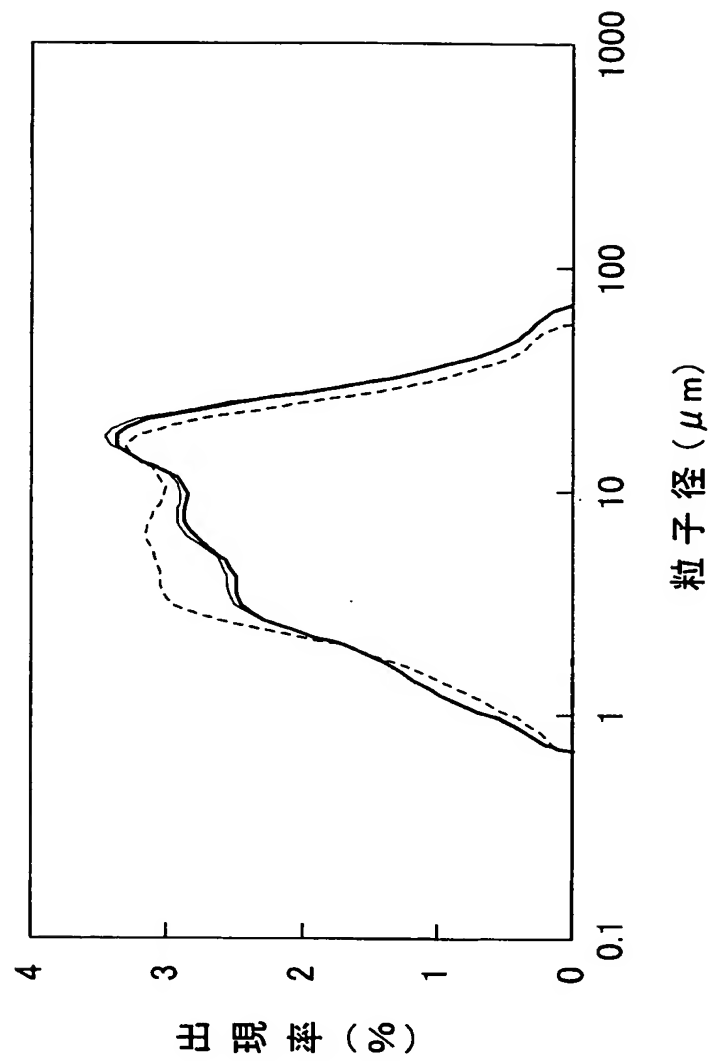
【図 17】

(図 17)



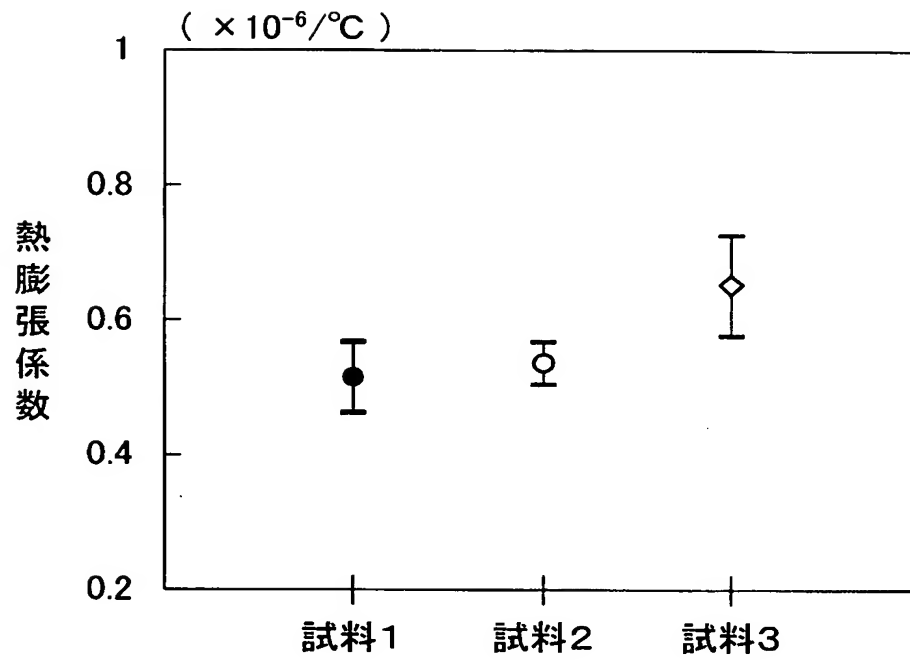
【図 18】

(図 18)



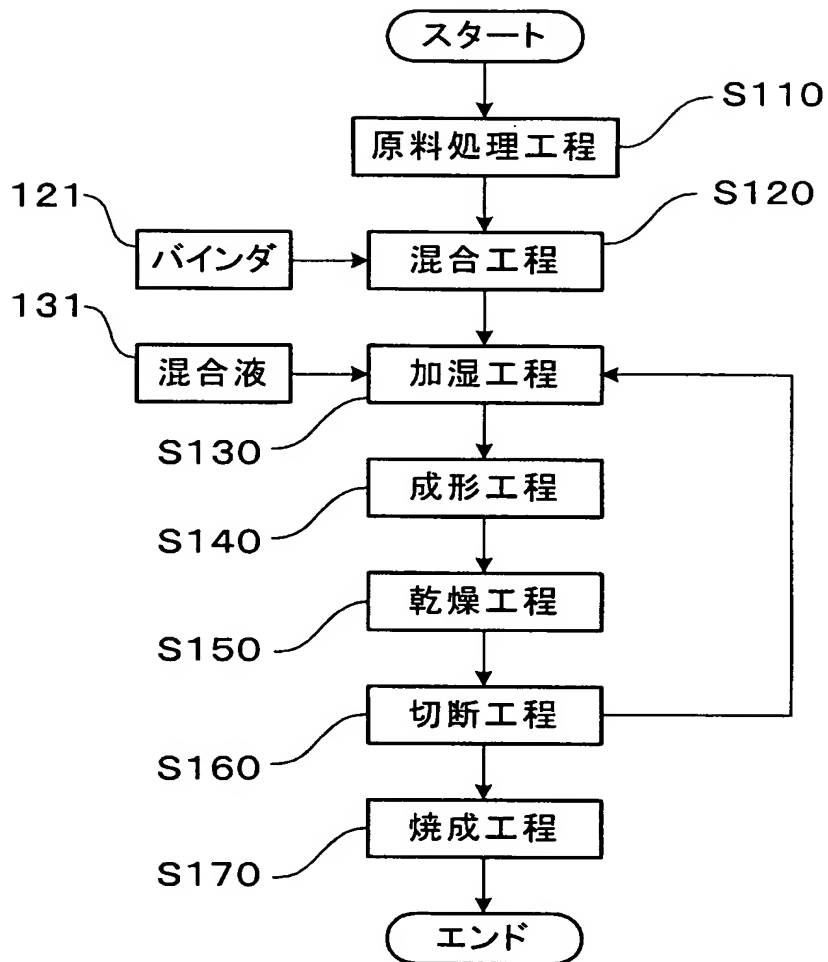
【図 19】

(図 19)



【図 20】

(図 20)







【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 コージェライトセラミック体の品質劣化を生じない再生セラミック化原料及びこれを用いたコージェライトセラミック体の製造方法を提供すること。

【解決手段】 セラミック化原料及びバインダを混合して混合原料を生成する混合工程 S 1 2 0 と、混合原料に混合液を加えて加湿原料を生成する加湿工程 S 1 3 0 と、加湿原料を混練し、押出成形してセラミック成形体を成形する成形工程 S 1 4 0 と、セラミック成形体を乾燥する乾燥工程 S 1 5 0 と、セラミック成形体の不要部を切断する切断工程 S 1 6 0 と、セラミック成形体を焼成する焼成工程 S 1 7 0 とを含む。再生工程 S 1 8 0 では、不要部を粉碎した粒子のうち、所定の粒径に満たない粒子を除去して、所定範囲の粒径の粉碎粒子を生成する。そして、混合工程 S 1 2 0 のセラミック化原料の少なくとも一部としては、粉碎粒子を用いる。

【選択図】 図 1

特願 2 0 0 3 - 0 1 6 6 2 2

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 0 0 4 2 6 0 ]

1 . 変 更 年 月 日

1 9 9 6 年 1 0 月 8 日

[ 変 更 理 由 ]

名 称 変 更

住 所

愛 知 県 刈 谷 市 昭 和 町 1 丁 目 1 番 地

氏 名

株 式 会 社 デ ン ソ ー